



MODELISATION NUMERIQUE ET EXPERIMENTALE DU TRANSPORT PREFERENTIEL DE PARTICULES DANS LES SOLS NON SATURES

Samer Majdalani

► To cite this version:

Samer Majdalani. MODELISATION NUMERIQUE ET EXPERIMENTALE DU TRANSPORT PREFERENTIEL DE PARTICULES DANS LES SOLS NON SATURES. Hydrologie. Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2007. Français. NNT : . tel-00327882

HAL Id: tel-00327882

<https://theses.hal.science/tel-00327882>

Submitted on 9 Oct 2008

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

N° attribué par la bibliothèque

/ / / / / / / / / /

T H E S E

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'INPG

Spécialité : « *Océan, Atmosphère, Hydrologie* »

préparée au sein du

Laboratoire d'étude des Transferts en Hydrologie et Environnement
UMR 5564 (CNRS, INPG, IRD, UJF)

dans le cadre de l'Ecole Doctorale « **TERRE, UNIVERS, ENVIRONNEMENT** »

présentée et soutenue publiquement
par

Samer MAJDALANI

le 8 Octobre 2007

**MODELISATION NUMERIQUE ET EXPERIMENTALE DU TRANSPORT PREFERENTIEL
DE PARTICULES DANS LES SOLS NON SATURES**

Directeurs de thèse : Rafael ANGULO-JARAMILLO et Liliana DI-PIETRO

Composition du Jury

| | | |
|----------------------------|--------------------------------|------------------------|
| Mr Charles OBLED | Professeur, INP Grenoble | Président |
| Mr Henri BERTIN | DR CNRS, TREFLES Bordeaux | Rapporteur |
| Mr Michel QUINTARD | DR CNRS, IMF Toulouse | Rapporteur |
| Mr Luc AQUILINA | Professeur, Géosciences Rennes | Examineur |
| Mlle Stéphanie ROULIER | ETH, Zurich | Examineur |
| Mme Liliana DI PIETRO | DR INRA, Avignon | Co-directrice de thèse |
| Mr Rafael ANGULO-JARAMILLO | CR CNRS, LTHE Grenoble | Directeur de thèse |

« There are two possible outcomes: If the result confirms the hypothesis, then you've made a measurement. If the result is contrary to the hypothesis, then you've made a discovery»

Enrico Fermi

Résumé

Les particules colloïdales transportées dans la zone non saturée du sol facilitent le transport des contaminants vers les eaux souterraines. Dans cette thèse, l'intérêt est porté sur la mobilisation in-situ et le transport des particules naturellement présentes dans des colonnes de sol non remaniées, et ceci sous des conditions non saturées d'écoulement. L'étude soulève la problématique de la disponibilité et de la possibilité de régénération ou d'épuisement du stock (« pool ») de particules mobilisables. L'objectif de la thèse est d'étudier l'évolution temporelle du stock de particules que ce soit pendant l'événement pluvieux ou pendant la durée d'interruption de pluie (la pause) qui sépare deux événements pluvieux successifs.

En s'appuyant sur les données expérimentales, un modèle de mobilisation et de transport préférentiel des particules dans des lysimètres (70 cm hauteur, 25 cm diamètre) a été élaboré. Le modèle utilise l'approche des ondes cinématiques dispersives pour décrire le transfert de l'eau, et l'équation convection dispersion avec un terme source/puit pour décrire la mobilisation et le transfert des particules. L'idée de base du modèle est de prendre en compte la possibilité d'une évolution temporelle du stock de particules mobilisables pendant l'événement pluvieux. Ceci est fait à travers une cinétique de détachement (source) de premier ordre ayant un coefficient de détachement variable avec le temps. Quant au terme puit, il est décrit par une cinétique d'attachement de premier ordre ayant un coefficient d'attachement constant avec le temps. Le modèle reproduit avec satisfaction les tendances des particulogrammes pour différentes conditions physico-chimiques expérimentales.

L'évolution temporelle du pool de particules mobilisables pendant la pause qui sépare deux événements pluvieux est étudiée expérimentalement. Ceci est fait en observant l'impact de la durée de pause sur la mobilisation ultérieure de particules. Pour cela, une large gamme de durées de pauses (allant d'une heure à un mois et demi) est essayée sur deux sols différents et avec deux forces ioniques et deux intensités de pluie différentes. Les pauses sont imposées dans un ordre croissant, régulier ou irrégulier. Les résultats montrent que la mobilisation de particules durant la pause dépend de sa durée. Le comportement de mobilisation observé est assez particulier : la masse de particules mobilisées par événement pluvieux augmente, passe par un maximum puis diminue pour des pauses croissantes. Les forces capillaires semblent être le mécanisme responsable de la mobilisation de particules durant la pause.

L'application du modèle de transport de particules sur tous les particulogrammes résultant de l'étude de l'effet de pause sur la mobilisation ont permis de lier le paramètre décrivant le détachement par accélération du flux d'eau à une condition expérimentale : la durée de pause.

Mots clés : zone non saturée, sol structuré, macropores, transport préférentiel, particules, mobilisation, détachement dynamique, force ionique, forces capillaires, cycles imbibition séchage.

Numerical and experimental modelling of preferential particle transport in unsaturated soils

Abstract

Colloidal particles of the vadose zone facilitate contaminant transport into groundwater. In this thesis, we are interested in in-situ mobilization and transport of naturally occurring particles from undisturbed soil columns, under unsaturated water flow conditions. The study raises the problematic of the availability and the possible regeneration or exhaustion of the stock (pool) of dispersible particles. The thesis objectives are to study the temporal evolution of the particles stock, during both the rainfall event and the pause period separating two successive rainfall events.

Based on the experimental data, a mobilization and preferential particle transport model through lysimeters (height: 70 cm, diameter: 25 cm) was developed. The model uses the dispersive kinematic waves approach in order to describe water transfer and the convection-dispersion equation with a source/sink term to model particles mobilisation and transport. The temporal evolution of the pool of particles during the rainfall event is taken into account by considering a first order kinetic detachment of particles (source) with a detachment coefficient variable with time. The sink term is described by a classical first order kinetic attachment (constant attachment coefficient). The model reproduces successfully the breakthrough curves corresponding to different physico-chemical experimental conditions.

The temporal evolution of the pool of particles during the pause period is investigated under the experimental aspect. This is done by studying the effect of the pause duration on subsequent particle leaching. A large panel of pause durations (ranging from one hour to one and a half month) was tested on two different soils with two different ionic strength and two different rainfall intensities of the incoming solution. Pauses were tested in an increasing, regular, and irregular order. The results show that particle mobilization during the pause depends on the duration of the pause. A particular mobilization behavior was observed: the total mass of particles mobilized by rainfall event increases, reaches a maximum, then decreases for ever increasing pause durations. Capillary forces are thought to be the responsible mechanism of particle mobilization during the pause.

By applying the preferential particle transport model on the breakthrough curves resulting from the study of pause duration effect on particle mobilization, we find that the parameter describing particle detachment by water flux acceleration is related to an experimental condition : the pause duration.

Keywords: vadose zone, structured soils, macropores, preferential transport, particles, mobilization, dynamic detachment, ionic strength, capillary forces, wetting drying cycles.

TABLE DES MATIERES

| | |
|--|---------------|
| <u>INTRODUCTION</u> | 1 |
| <u>PREMIERE PARTIE : ETAT DE L'ART DES PROCESSUS DE MOBILISATION ET DE TRANSPORT DE PARTICULES EN MILIEU POREUX NON SATURE</u> | 7 |
| 1. DEFINITION ET INTERET | 9 |
| 2. ORIGINE DES PARTICULES | 10 |
| 3. CONTEXTE DE LA ZONE NON SATUREE | 10 |
| 4. MOBILISATION DES COLLOIDES EN MILIEUX POREUX MODELES | 11 |
| 4.1. ATTACHEMENT OU DEPOT | 11 |
| 4.2. DETACHEMENT | 14 |
| 4.3. LES FORCES CAPILLAIRES | 15 |
| 5. MOBILISATION DES COLLOIDES EN MILIEUX POREUX NATURELS | 17 |
| 6. OBJECTIFS ET ORGANISATION DE LA THESE | 20 |
| <u>DEUXIEME PARTIE : EVOLUTION TEMPORELLE DU « POOL » DE PARTICULES MOBILISABLES PENDANT L'EVENEMENT PLUVIEUX : DEVELOPPEMENT DU MODELE DE TRASPORT DE PARTICULES</u> | 23 |
| PRESENTATION DU MODELE PUBLIE (Majdalani et al., 2007a) | 25 |
| PUBLICATION WRR: MOBILIZATION AND PREFERENTIAL TRANSPORT OF SOIL PARTICLES DURING INFILTRATION: A CORE-SCALE MODELLING APPROACH | 29 |
| <u>TROISIEME PARTIE : EVOLUTION TEMPORELLE DU « POOL » DE PARTICULES MOBILISABLES PENDANT LA PERIODE DE PAUSE</u> | 43 |
| CHAPITRE 1 : PREAMBULE | 45 |
| 1.1. LE STOCK DE PARTICULES | 45 |
| 1.2. COMMENT QUANTIFIER L'EVOLUTION TEMPORELLE D'UN STOCK DE PARTICULES MOBILISABLES | 47 |
| CHAPITRE 2 : MATERIEL, METHODES ET PROTOCOLE EXPERIMENTAL | 49 |

| | |
|--|-----|
| 2.1. LES COLONNES DE SOL D'AVIGNON | 49 |
| 2.1.1. PROTOCOLE DE PRELEVEMENT | 50 |
| 2.1.2. GRANULOMETRIE | 50 |
| 2.2. PRELEVEMENT DE LA COLONNE L (SOL DE VERSAILLES) | 53 |
| 2.3. PROTOCOLE EXPERIMENTAL | 54 |
| 2.3.1. SPECTROPHOTOMETRIE | 54 |
| 2.3.2. DISPOSITIF EXPERIMENTAL | 57 |
| 2.3.3. CONDUCTIVITE HYDRAULIQUE A SATURATION K_{sat} | 58 |
| 2.3.4. PROTOCOLE EXPERIMENTAL POUR L'ESSAI DE PAUSE | 59 |
| CHAPITRE 3 : RESULTATS EXPERIMENTAUX | 61 |
| 3.1. FORMES TYPQUES D'UN HYDROGAMME, D'UN PARTICULOGAMME ET D'UNE « COURBE CUMULEE » DE PARTICULES | 61 |
| 3.2. RESULTATS DE L'EFFET DE PAUSE SUR LA MOBILISATION DE PARTICULES | 66 |
| 3.2.1. EVOLUTION DU CUMUL DE PARTICULES EN FONCTION DE LA PAUSE (COLONNE H) | 66 |
| 3.2.2. EFFET DE LA FORCE IONIQUE (COLONNE G) | 77 |
| 3.2.3. EST-CE UNE ILLUSION ? | 86 |
| 3.2.4. EXCLUSION DE LA POSSIBILITE D'ILLUSION (COLONNE G bis) | 89 |
| 3.2.5. EFFET D'UN LESSIVAGE INTENSIF PREALABLE AUX ESSAIS DE PAUSE (COLONNE E) | 92 |
| 3.2.6. EFFET DE L'INTENSITE DE PLUIE (COLONNE F) | 95 |
| 3.2.7. PAUSES REGULIERES ET IRRÉGULIERES (COLONNE M) | 98 |
| 3.2.8. EFFET DES PAUSES SUR LE SOL DE VERSAILLES (COLONNE L) | 102 |
| 3.3. SYNTHESE | 109 |
| CHAPITRE 4 : PROCESSUS DE MOBILISATION EVENTUELS PENDANT LA PAUSE, INTERPRETATIONS ET CONSEQUENCES | 111 |
| 4.1. INTRODUCTION | 111 |
| 4.2. INTERPRETATION DE LA FORME TYPQUE DES PARTICULOGAMMES | 111 |
| 4.3. SCENARIOS DE MOBILISATION DURANT LA PAUSE | 115 |
| 4.3.1. MOBILISATION CROISSANTE DURANT LA PAUSE (MONTEE) | 116 |
| 4.3.2. MOBILISATION DECROISSANTE DURANT LA PAUSE (DESCENTE) | 122 |
| 4.4. CONSEQUENCES - SYNTHESE | 124 |
| CHAPITRE 5 : APPLICATION DU MODELE DE TRANSPORT DE PARTICULES A UNE LARGE SERIE DE DONNEES EXPERIMENTALES | 125 |
| 5.1. TRAITEMENT STATISTIQUE DES PARAMETRES OPTIMISES | 126 |
| 5.2. VARIATION DES PARAMETRES DU MODELE EN FONCTION DE LA PAUSE | 128 |
| 5.3. SYNTHESE | 129 |
| CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES | 133 |
| ANNEXES | 139 |

| | |
|---|------------|
| ANNEXE I – L’OPTIMISATION DES PARAMETRES PAR LA METHODE INVERSE DES ALGORITHMES GENETIQUES | 141 |
| ANNEXE II – FIGURES COMPLEMENTAIRES | 167 |
| <u>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES</u> | <u>187</u> |

INTRODUCTION

Introduction

L'étude du transport des particules dans les sols s'inscrit dans le cadre de la lutte contre la pollution des sols et des eaux souterraines. Le transport des particules colloïdales a été observé dans différents types d'environnements de subsurface : la zone non saturée des sols, les aquifères souterrains, les roches fissurées, etc., et sous des conditions hydrogéochimiques bien particulières. De nombreuses études de terrain ou de laboratoire ont montré l'aptitude des particules à être mises en suspension, leur capacité de sorption, ou leur comportement de complexation les amène à devenir des vecteurs potentiels du transport de polluants (métaux lourds, pesticides, radionucléides) dans les sols, vers la nappe phréatique.

Suite à l'activité biologique et à l'histoire des différents écoulements, les sols possèdent une certaine structure matricielle et porale avec une macroporosité plus ou moins développée. Bien que le volume de la macroporosité soit petit par rapport au volume total des pores, elle peut néanmoins contribuer à la majorité de l'écoulement et emmener l'eau directement de la surface vers la profondeur sans qu'elle ne traverse la matrice proprement dite : c'est ce que l'on désigne par écoulement préférentiel. La présence des écoulements préférentiels accélère le phénomène de pollution puisqu'un polluant déposé à la surface du sol sera rapidement transféré en profondeur.

Dans ce cadre, les particules colloïdales naturellement présentes dans le sol jouent un rôle très important vis-à-vis du transport des polluants vu leur capacité à faciliter le transport de ces derniers : les colloïdes possèdent une surface spécifique très importante et forment des excellents sorbants pour les polluants. Ainsi, les polluants seront transportés (ou véhiculés) par les colloïdes sur des grandes distances dans les sols en comparaison avec les distances qu'ils pourraient parcourir seuls en absence de particules colloïdales (McCarthy et Zachara, 1989, Ryan et Elimelech, 1996 ; Kretzschmar et al., 1999).

Durant les dernières décennies, de nombreuses études ont été menées en milieux homogènes saturés avec des colloïdes homogènes afin de comprendre les processus de mobilisation et de transport des colloïdes. On peut dire actuellement que cet objectif a été atteint en grande partie, et les principaux facteurs influençant la mobilisation sont identifiés : composition chimique de la solution du sol (force ionique, pH, nature des ions), conditions d'écoulement de l'eau dans les pores (vitesse, interface eau-air, film d'eau), ainsi que la structure elle-même du milieu poreux (taille des pores, connectivité du réseau poral, nature de la matrice solide).

Les difficultés surgissent quand on essaie d'appliquer directement les connaissances acquises en milieux homogènes saturés sur des milieux naturels non saturés vu la complexité de ces derniers au niveau de la structure, de la géométrie et de la connectivité des pores, des

éléments constituant de la matrice solide, et de la présence de la phase gazeuse. Ajoutons aussi qu'un milieu poreux naturel est susceptible d'évoluer au cours d'événements pluvieux successifs (changements de structure) ce qui n'est pas le cas des milieux homogènes modèles (billes de verre par exemple). Pour cela, les études sur la mobilisation des colloïdes en milieu naturel (où les conditions non saturées et les écoulements préférentiels sont plutôt la règle que l'exception) sont moins nombreuses qu'en milieux homogènes. Et dans ces derniers cas, les auteurs recourent généralement à des structures invariantes avec le temps (colonnes de sol remaniées), ainsi qu'à des colloïdes modèles de même type (microsphères de Latex par exemple) injectés en surface avec une quantité bien connue et restitués en bas de la colonne. Il faut noter que même si le milieu considéré est naturel, les colloïdes modèles utilisés sont loin de représenter l'ensemble des colloïdes mobilisables naturellement et présents dans le sol.

Rares sont les études portant sur la mobilisation in-situ de particules colloïdales naturellement présentes dans des colonnes de sol non remaniées (Jacobsen et al., 1997; Rousseau, 2003; Rousseau et al., 2004). La difficulté principale dans ce genre d'étude, est la disponibilité des particules mobilisables ainsi que l'éventuelle évolution des stocks (ou pool) de particules avec le temps (i.e. suite à plusieurs cycles d'imbibition-séchage). Quelques auteurs ont évoqué cette dernière possibilité sans toutefois mener une étude systématique de l'effet du temps sur l'évolution du « pool » de particules mobilisables (Schelde et al., 2002).

Très peu d'études portent sur l'épuisement et la régénération du stock de particules mobilisables. La mobilisation continue (i.e. ininterrompue) de particules, même après un grand nombre d'événements pluvieux, a poussé certains auteurs à postuler l'existence d'une source apparemment illimitée de colloïdes (El-Farhan et al., 2000; Schelde et al., 2002), alors que la diminution de la mobilisation a poussé d'autres à postuler l'existence d'un stock fini de particules mobilisables qui peut se régénérer entre deux infiltrations successives (Kaplan et al., 1993). Malgré l'absence d'études systématiques, la régénération du stock a été attribuée aux cycles gel/dégel (Worrall et al., 1999) et imbibition/séchage (Kaplan et al., 1993).

Cette thèse s'inscrit dans la continuité du travail de Rousseau (2003) qui a étudié la mobilisation in-situ des colloïdes dans des lysimètres non remaniés, et qui a mis en évidence l'existence d'écoulements préférentiels d'eau conduisant à un transport préférentiel de particules colloïdales.

Dans cette thèse, l'étude de la mobilisation des particules est menée sous les deux aspects : expérimentation et modélisation. Il s'agit d'étudier l'évolution temporelle de la concentration de particules dans les effluents lors d'événements pluvieux. La variable principale de notre étude est l'évolution temporelle du stock de particules mobilisables in-situ. Cette variable est explorée pendant l'événement pluvieux lui-même et pendant la période d'arrêt de pluie (ou pause) entre deux événements pluvieux successifs.

La **première partie** de cette étude présente une revue bibliographique de l'état de l'art des processus de mobilisation et de transport des particules dans les sols.

La **deuxième partie** est consacrée à l'élaboration d'un modèle de mobilisation et de transport préférentiel des particules dans des lysimètres (70 cm hauteur, 25 cm diamètre) à partir des données expérimentales de Rousseau (2003). Le transfert préférentiel de l'eau a été décrit par le modèle des ondes cinématiques dispersives (« Kinematic Dispersive Wave » KDW) développé par Di Pietro et al. (2003). Ce modèle ne nécessite que l'ajustement de trois paramètres. Le transfert des particules a été décrit par l'équation convection-dispersion avec un terme source/puit. L'idée de base du modèle de transport de particules est de prendre en compte la possibilité d'une évolution temporelle du stock de particules mobilisables pendant l'événement pluvieux (Majdalani et al., 2007a). Ceci est fait à travers une cinétique de détachement (terme source) de premier ordre ayant un coefficient de détachement variable avec le temps. Quant au terme puit, il est décrit par une cinétique d'attachement de premier ordre ayant un coefficient d'attachement constant avec le temps.

L'optimisation des paramètres de transfert de l'eau et de mobilisation des particules est faite à l'aide de la méthode inverse des Algorithmes Génétiques (AG) binaires (**Annexe 1**) (Majdalani et al., 2007b).

La **troisième partie** (Majdalani et al., 2007c) de ce manuscrit est consacrée à l'étude expérimentale de l'évolution temporelle du stock de particules mobilisables pendant la période de pause qui sépare deux événements pluvieux successifs. Ceci est fait en observant l'impact de la durée de la pause sur la mobilisation ultérieure de particules. Pour cela, une large gamme de durées de pauses (allant d'une heure à un mois et demi) est testée sur deux sols différents et avec deux forces ioniques différentes de la solution infiltrante. Les "essais de pause" sont aussi réalisés en considérant un ordre croissant, régulier ou irrégulier des pauses. Après avoir exposé les résultats expérimentaux, les mécanismes de mobilisation de particules durant la pause sont discutés, tout en évoquant les indices qui privilégient certains mécanismes parmi d'autres. Finalement, nous utilisons le modèle de transport de particules développé dans la deuxième partie pour simuler tous les particulogrammes de la troisième partie résultant de l'étude de la durée de pause. Le but c'est de lier les paramètres du modèle aux conditions expérimentales afin d'améliorer sa capacité de prédiction.

Notre étude a montré que la mobilisation de particules durant la pause dépend de la durée de cette pause, et ceci suivant un comportement de mobilisation assez particulier i.e. 'augmentation-maximum-diminution' de la masse totale de particules mobilisées par événement pluvieux pour des pauses de plus en plus grandes.

Les conséquences de ce résultat sont discutées ainsi que les pistes à envisager pour améliorer la compréhension des processus de mobilisation de particules pendant la pause et pendant l'infiltration.

PREMIERE PARTIE

Etat de l'art des processus de mobilisation et de
transport de particules en milieu poreux non
saturé

Etat de l'art des processus de mobilisation et de transport de particules en milieu poreux non saturé : objectifs

1. Définition et intérêt

Les particules colloïdales mobiles sont omniprésentes dans le réseau poral de la zone non saturée du sol. Elles comprennent les argiles, la matière organique, les oxydes et hydroxydes métalliques, les fragments minéraux, les carbonates, les virus et les bactéries. La taille des particules colloïdales se situe entre 10 nm et 10 μm (Pilgrim et Huff, 1983 ; Hunter, 1986 ; Buddemeir et Hunt, 1988 ; Degueldre et al., 1996 ; Kaplan et al., 1997). Pour des particules de cette taille, l'influence des forces de gravitation est négligeable devant celle du mouvement Brownien. Ces particules colloïdales peuvent être détritiques (provenant directement de la roche mère) ou authigéniques (formées in situ lors de réactions d'altération des minéraux primaires). Dans l'environnement naturel, ces composants apparaissent souvent sous forme de complexes ou de mélanges d'agrégats, ce qui leur confère des propriétés différentes des composants isolés correspondants. Les particules colloïdales revêtent une surface spécifique très importante ($> 10 \text{ m}^2.\text{g}^{-1}$), et constituent ainsi d'excellents sorbants pour les polluants.

L'étude du mouvement des particules colloïdales est reconnue intéressante pour les raisons suivantes :

- Les colloïdes facilitent le transport des contaminants (Penrose et al., 1990; de Jonge et al., 1998; Ryan et al., 1998; McGechan et Lewis, 2002). Par exemple, Penrose et al. (1990) ont montré que le plutonium et l'américium provenant d'un dépôt de déchets radioactifs liquides migrent plus vite sous forme colloïdale que sous forme ionique.
- Le dépôt des colloïdes peut réduire la perméabilité hydraulique des sols (Quirk et Schofield, 1955; Frenkel et al., 1978; Baveye et al., 1998).
- Le mouvement des microbes pathogènes (biocolloïdes) lors de la valorisation par épandage des boues de stations d'épuration présente un danger pour la santé publique (Hurst, 1980; Powelson et al., 1993; Redman et al., 2001).
- Le mouvement des colloïdes à travers la zone non saturée forme un processus important dans la genèse des sols (Buol et Hole, 1961; McKeague et St. Arnaud, 1969; Matlack et Houseknecht, 1989).

2. Origine des particules

Plusieurs sources potentielles de particules colloïdales mobiles ont été identifiées dans les milieux poreux de subsurface. Ces particules colloïdales peuvent être détritiques (provenant directement de la roche mère) ou authigéniques (formées in situ lors de réactions d'altération des minéraux primaires). Leur présence dans la phase aqueuse des horizons souterrains est attribuable à de nombreux mécanismes dépendant de perturbations d'origine chimique et physique du milieu. Parmi ces mécanismes on peut citer :

- la dissolution de la matrice due à des changements de pH ou de potentiel redox ou à tout changement physico-chimique du milieu,
- la fragmentation de la roche mère sous l'effet d'actions érosives internes dues à des pompes, au remplacement d'eau salée par de l'eau douce ou d'actions d'érosion interne du milieu sous l'effet du flux d'eau,
- une sursaturation en espèces minérales conduisant à des précipitations,
- la mobilisation ou l'introduction de biocolloïdes tels les virus ou les bactéries,
- la formation de complexes par des sécrétions de substances exocellulaires libérées par des bactéries immobiles,
- la formation de micelles par agglomération d'acides humiques.

3. Contexte de la zone non saturée

La zone non saturée présente des particularités qui jouent un rôle critique dans la mobilisation et le transport des colloïdes :

- La présence des interfaces eau-air,
- Les régimes transitoires d'écoulement et les transitions chimiques qui en découlent,
- La structure et l'hétérogénéité du sol.

La présence de la phase gazeuse (air) affecte la partition des colloïdes entre les colloïdes dans l'eau (phase liquide) et les colloïdes du sol (phase solide). Les colloïdes s'adsorbent à l'interface eau-air (Wan et Wilson, 1994b; Sirivithayapakorn et Keller, 2003) et leur mouvement est influencé par le mouvement des bulles d'air (Gomez-Suarez et al., 2001;

Saiers et al., 2003). Dans les milieux poreux non saturés, le régime d'écoulement de l'eau ainsi que sa chimie sont fortement transitoires. L'écoulement transitoire, pendant l'imbibition ou le drainage, favorise la mobilisation rapide des particules (El-Farhan et al., 2000; Zhuang et al., 2007). Les transitions chimiques, souvent produites par l'introduction dans le sol d'une solution infiltrante de faible force ionique, conduisent à la déstabilisation des agrégats et à la mobilisation des colloïdes (Kaplan et al., 1993; Ryan et al., 1998). Les sols de la zone non saturée sont plus ou moins structurés et hétérogènes. Ainsi, la présence de macropores favorise les écoulements préférentiels qui augmentent la mobilisation et réduisent le dépôt de particules. La division du sol en plusieurs horizons limite par exemple le mouvement des colloïdes en favorisant le dépôt de particules dans les horizons supérieurs (Bond, 1986). Cependant, il faut noter que la majorité des études de mobilisation et de transport des particules colloïdales ont été faites dans des milieux poreux 'modèles' (homogènes) composés de grains ayant la même forme et taille.

4. Mobilisation des colloïdes en milieux poreux modèles

4.1. Attachement ou dépôt

La majorité des études en milieux poreux modèles (i.e. homogènes) ont été faites sous des conditions de teneur en eau constante et de régime d'écoulement uniforme, en explorant surtout les facteurs qui influencent le dépôt (attachement) des colloïdes. Les résultats expérimentaux montrent que le coefficient d'attachement des colloïdes est sensible aux variations de certaines propriétés physiques et chimiques, comme la teneur volumique en eau, l'intensité du débit d'eau, la force ionique de la solution infiltrante, ainsi que la taille et la composition des colloïdes (Wan et Wilson, 1994b; Wan et Tokunaga, 1997; Jewett et al., 1999; Gamerding et Kaplan, 2001a; Saiers et Lenhart, 2003a). Ainsi, les variations du coefficient d'attachement des colloïdes sont la résultante de différentes interactions entre les mécanismes de dépôt suivants : attachement grain-matrice i.e. attachement physico-chimique (théorie DLVO), filtration dans un pore (« pore-straining »), filtration dans un film d'eau (« film-straining »), et adsorption à l'interface eau-air (Figure I.1).

L'attachement d'une particule colloïdale à la matrice du sol peut être estimé selon la théorie DLVO (Derjaguin, Landau, Verwey, Overbeek) (Derjaguin et Landau, 1941 ; Verwey and Overbeek, 1948) en calculant le potentiel énergétique d'interaction à partir de la somme des forces électrostatiques dans la double couche, les forces de van der Waals et les forces d'hydratation à courte portée.

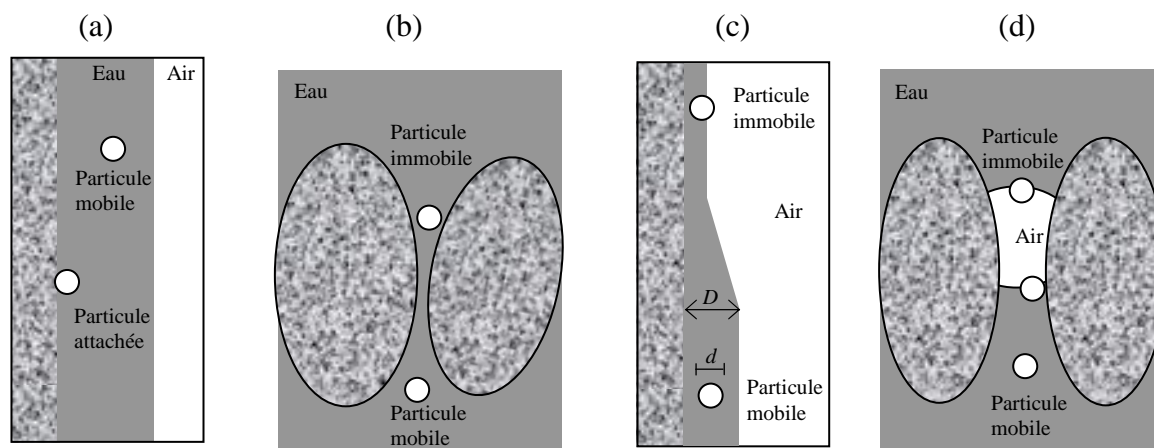


Figure I.1 : Mécanismes de dépôt des colloïdes. (a) Attachement grain-matrice i.e. attachement physico-chimique (théorie DLVO), (b) Filtration dans un pore (« pore-straining »), (c) Filtration dans un film d'eau (« film-straining ») : D est l'épaisseur du film et d est le diamètre de la particule colloïdale, (d) Adsorption à l'interface eau-air.

L'amplitude et la direction de ces forces dépendent des caractéristiques physico-chimiques du colloïde et de la surface de la matrice du sol, ainsi que de la composition chimique de la solution infiltrante. Pour de faibles forces ioniques, une barrière d'énergie répulsive se développe entre les particules de même charge et les surfaces entraînant le ralentissement du dépôt. Pour de fortes forces ioniques, la barrière d'énergie répulsive disparaît et les cinétiques du dépôt deviennent rapides et limitées par le transport de particules (Figure I.1a). Il faut rappeler qu'il n'existe pas d'études qui prédisent le dépôt de particules à partir de la théorie DLVO dans les milieux non saturés.

La filtration se produit dans les pores qui ont une taille assez fine pour permettre le passage des colloïdes (Figure I.1b). Les études de filtration des colloïdes dans les pores en milieux poreux saturés ont montré que les colloïdes sont retenus si leur diamètre dépasse 1/20 à 1/10 le diamètre des grains (Sakthivadivel, 1966; Herzig et al., 1970). Des études plus récentes ont exploré la filtration de microsphères de polystyrene dans les pores d'un milieu poreux homogène (Bradford et al., 2002, 2003). Elles ont montré que la filtration dans un pore peut être modélisé suivant une cinétique de dépôt du premier ordre avec un coefficient de dépôt qui dépend de la profondeur et du diamètre moyen des grains solides constituant le milieu.

Dans un milieu partiellement saturé ayant des pores de dimension supérieure à celle des colloïdes, la filtration peut se produire dans des films d'eau (« film-straining ») ayant une épaisseur plus petite que le diamètre du colloïde (Figure I.1c). Quand l'épaisseur du film D est supérieure au diamètre du colloïde d , la filtration n'a pas lieu. Par contre, quand l'épaisseur du film devient inférieure ou égale au diamètre du colloïde, la tension de surface

retient le colloïde contre la paroi de la matrice solide. Le phénomène de filtration des colloïdes dans les films d'eau est proportionnel à l'apparition de ces films ; Leur apparition augmente avec la pression capillaire i.e. le drainage du milieu (Wan et Tokunaga, 1997).

Les interfaces eau-air présentes dans les milieux non saturés peuvent servir de collecteurs de colloïdes (Figure I.1d). Deux cas de figure sont possibles : (i) les colloïdes sont transportés vers l'interface eau-air, ou bien (ii) c'est l'interface eau-air qui se déplace vers les colloïdes : c'est surtout le cas pendant les phases transitoires du régime d'écoulement (imbibition et drainage). Les colloïdes sont retenus à l'interface eau-air par capillarité ou par les forces électrostatiques. Par conséquent, l'adsorption à l'interface eau-air dépend du pH, de la force ionique et des propriétés de la surface du colloïde. L'augmentation de la force ionique réduit la barrière d'énergie répulsive entre l'interface eau-air (négativement chargée) et les colloïdes minéraux (aussi négativement chargés) favorisant ainsi les conditions d'attachement des colloïdes à l'interface eau-air (Saïers et Lenhart, 2003a). En plus, les particules hydrophobes montrent une plus grande affinité pour l'interface eau-air que les particules hydrophiles (Lenhart et Saïers, 2002). Crist et al. (2004) ont visualisé la filtration de microsphères de latex carboxylées (hydrophiles, négativement chargées) dans des chambres de sable remanié. Ils ont observé que les colloïdes sont surtout retenus dans un mince film d'eau où l'interface eau-air et l'interface solide se rejoignent (i.e. interface eau-air-solide) (Figure I.2).

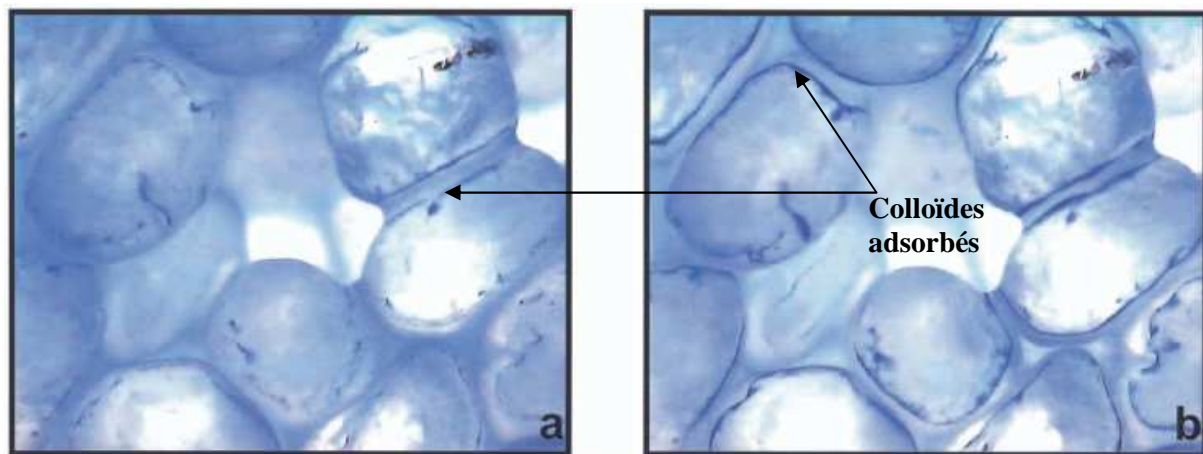


Figure I.2 : Avec le temps, les colloïdes s'adsorbent préférentiellement à l'interface eau-air-solide (a) Au moment de l'application de la suspension de colloïdes hydrophiles, (b) Une heure après (d'après Crist et al., 2004).

L'importance relative des différents processus décrits ci-dessus, vis-à-vis du dépôt des colloïdes, varie suivant la chimie de la solution infiltrante, des caractéristiques des colloïdes et de la teneur volumique en eau (distribution de l'eau à travers le profil du sol). Avec une teneur en eau et une force ionique croissantes, le mécanisme de dépôt dominant passera

successivement de la filtration dans le film à l'adsorption à l'interface eau-air, puis à l'attachement physico-chimique grain-paroi.

Il faut noter qu'en général, l'attachement de particules est un processus dynamique (variable avec le temps) et que les théories décrites ci-dessus ne sont valables que pendant le stade initial du dépôt. Avec un dépôt continu de particules sur la surface matricielle, le coefficient d'attachement va diminuer ou augmenter suivant la nature de l'interaction particule-surface ou particule-particule. Le coefficient d'attachement diminuera quand l'interaction particule-particule est répulsive, et que la surface de dépôt devient de plus en plus obstruée avec l'accumulation progressive de particules. Ce phénomène d'exclusion de surface est appelé le blocage (Johnson et Elimelech, 1995; Adamczyk et al., 2005). En absence de barrière énergétique, les interactions particule-particule sont favorables d'une manière à ce que le dépôt de certaines particules favorise le dépôt des autres (vu que les particules déposées offrent de nouvelles surfaces de déposition aux autres). Ce phénomène dynamique est dénommé maturation « ripening » et conduit à la couverture de la surface de dépôt par une multicouche complexe (Tien, 1989; Kukushkin et Slyozov, 1994).

4.2. Détachement

En comparaison avec l'attachement, peu d'études ont été menées pour étudier le détachement des colloïdes dans les milieux homogènes. Sur la base d'études faites en milieux poreux saturés, on peut dire que les perturbations apportées pour la chimie de la solution infiltrante favorisent le détachement de particules. La diminution de la force ionique et l'augmentation du pH par rapport à la solution du sol sont les perturbations chimiques les plus communes. Elles jouent un rôle principal dans la mobilisation de particules que ce soit en milieux saturé ou non saturé (Ryan et Gschwend, 1994; Grolimund et Borkovec, 1999).

Certaines études ont noté que l'augmentation de l'intensité du flux d'eau peut faciliter le détachement et le transport des particules (Kaplan et al., 1993; Vilks et Bachinski, 1996; Harter et al., 2000), alors que d'autres n'ont observé aucune influence de ce paramètre (Jacobsen et al., 1997). Plusieurs mécanismes ont été proposés pour expliquer l'éventuelle mobilisation suite à des perturbations du régime d'écoulement. Les colloïdes attrapés dans des pores fins (« pore-straining ») seront libérés si ces pores subissent une dilatation durant l'imbibition du sol (Saiers et Lenhart, 2003b). Le déplacement de l'interface eau-air associée au front d'imbibition et de drainage peut arracher par cisaillement les particules à partir de la matrice du sol et faciliter leur transport dans le milieu poreux (Gomez-Suarez et al., 2001; Saiers et al., 2003). L'augmentation du cisaillement hydrodynamique suite à l'accélération du flux d'eau fragilise les liaisons entre la surface de la matrice et les particules. L'hypothèse couramment émise est celle d'un détachement initié par un roulement de la particule, plutôt qu'un glissement ou un soulèvement (Sharma et al., 1992). L'équilibre des moments sur la

particule attachée à la surface de la matrice inclut : i) une force d'adhérence, normale à la surface, ii) une force de frottement (« trainée »), tangente à la surface et dirigée dans le sens de l'écoulement, et iii) une force de soulèvement, normale à la surface. Selon la taille de la particule, les actions de certaines forces peuvent être négligées. Pour des particules dont le diamètre est supérieur à 10 μm , l'influence des forces hydrodynamiques devient prédominant sur celle des forces physico-chimiques et du mouvement Brownien. En revanche, pour les particules de diamètre inférieur à 1 μm , ce sont les forces physico-chimiques et le mouvement Brownien qui prédominent.

4.3. Les forces capillaires

L'effet des forces capillaires sur la mobilisation des particules n'a pas été exploré dans le domaine colloïdal. Pourtant, les forces capillaires ont été largement étudiées dans les milieux granulaires (Santamarina, 2001) et dans les gels (Scherer, 1990). Ces études montrent un double effet de la capillarité sur le milieu poreux :

- D'une part, les ponts capillaires exercent une force d'attraction qui tend à rassembler (allant même jusqu'à souder) deux agrégats distincts (Ghezzehei et Or, 2000). C'est ce qu'on appelle le phénomène de coalescence où deux agrégats sphériques soumis à l'attraction d'un ménisque capillaire se rapprochent l'un de l'autre jusqu'à ce qu'ils se touchent (Figure I.3). Ensuite, la persistance de l'attraction conduit à la déformation des calottes sphériques qui vont se transformer petit à petit en un ménisque solide (en plus du ménisque liquide) qui se consolide avec le temps. Le résultat final est la cimentation de l'ensemble.
- D'autre part, les forces capillaires peuvent se développer d'une manière fortement inégale conduisant ainsi à une destruction partielle (i.e. locale) du milieu (Scherer, 1990). C'est ce qu'on appelle le phénomène du « cracking » qui se produit dans les parois des pores pendant le séchage (Figure I.4). Dans un milieu poreux ayant une large distribution porale, les gros pores se vident les premiers pendant que les petits pores sont encore remplis d'eau. Etant inversement proportionnelle au diamètre des pores, la pression capillaire est plus forte dans les petits pores. La différence de pression capillaire entre grands et petits pores va être de plus en plus prononcée au fur et à mesure que le séchage progresse. Ce stress différentiel sera la cause de fissurations locales dans les parois des pores (« crack »).

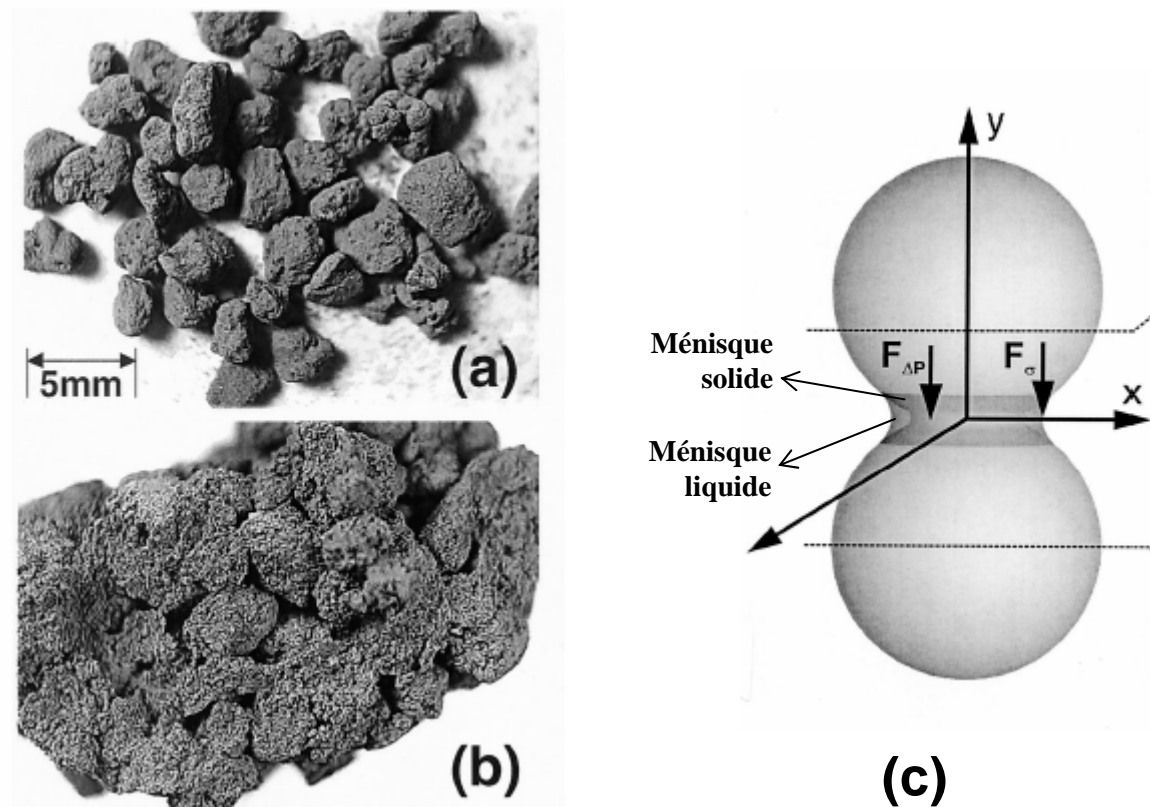


Figure I.3 : Le phénomène de coalescence : (a) Des agrégats secs séparés après tamisage, (b) Les mêmes agrégats soudés après plusieurs cycles d'imbibition-séchage, (c) Les anciennes calottes sphériques se déforment pour donner naissance à un ménisque solide qui soude les agrégats initialement séparés : $F_{\Delta P}$ (respectivement F_{σ}) est la force due au gradient de pression air-liquide (respectivement à la tension de surface) (D'après Ghezzehei et Or, 2000).

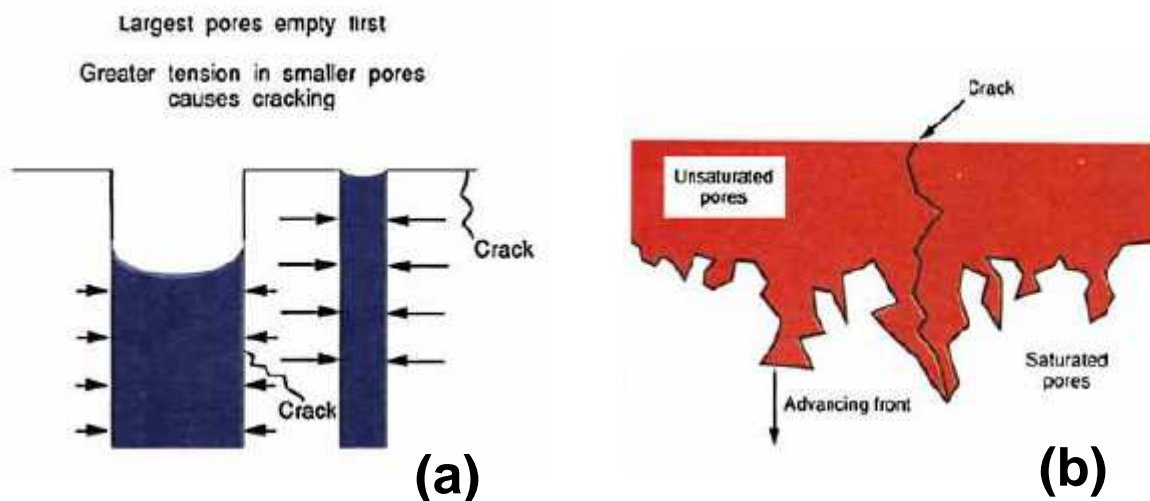


Figure I.4 : Phénomène de « cracking » : (a) Les grands pores se vident plus vite que les petits pores ; Donc la tension capillaire autour des petits pores est beaucoup plus grande qu'autour des gros pores, et ce stress différentiel conduit à une fissuration locale de la paroi des pores, (b) Développement du « crack » avec l'avancement du front de séchage (d'après Scherer, 1990).

5. Mobilisation des colloïdes en milieux poreux naturels

Les connaissances acquises dans les milieux homogènes ont été utilisées pour identifier les mécanismes majeurs qui influencent la mobilisation des colloïdes en milieu naturel non saturés et pour définir, au moins qualitativement, comment la mobilité des colloïdes change suite à des changements de teneur en eau du milieu, d'intensité du flux dans les pores, et de la chimie de la solution infiltrante. Cependant, les milieux naturels sont plus hétérogènes que les milieux modèles et ils diffèrent de ces derniers en trois points principaux :

- Les particules colloïdales naturellement présentes en zone non saturée possèdent une large distribution de taille.
- L'hétérogénéité des charges surfaciques en milieu naturel est beaucoup plus grande qu'en milieu modèle, ce qui rend quasi-impossible l'application de la théorie DLVO.
- Les milieux poreux naturels sont typiquement caractérisés par une large distribution porale, une géométrie complexe des pores, et une rugosité importante de la surface matricielle. Bien que certains sols présentent un réseau de pores plus ou moins développé, avec une distribution de pores assez étroite, l'existence dans le sol d'une activité biologique (racines de plantes, vers de terre) conduit à la création de macropores. Les macropores compliquent la description du transport des particules car ils conduisent à une non uniformité du profil de vitesse de l'eau infiltrante (Beven et Germann, 1982; Selker et al., 1999). Par conséquent, les modèles mathématiques conçus pour des milieux poreux homogènes sur la base d'écoulement uniforme ne peuvent être appliqués sans modifications quand il s'agit de milieux hétérogènes.

La présence de macropores verticaux continus accélère le transport rapide des particules de la surface vers la profondeur du sol. Pilgrim et Huff (1983), Jacobsen et al. (1997), Laegdsmand et al. (1999), Laubel et al. (1999) et McKay et al. (2000) ont observé la percée rapide de particules colloïdales à travers des colonnes de sol non remanié ou directement sur le terrain, induisant l'existence de flux préférentiels. Pilgrim et Huff (1983) ainsi que Hardy et al. (2000) ont suggéré que les particules étaient détachées par l'impact des gouttes de pluie à la surface, et que le flux de subsurface transportant les colloïdes prenait place principalement dans les macropores du sol. Les résultats d'expériences de traçage (par injection de solutés et de colorants) ont conforté l'hypothèse de flux préférentiels le long des macropores verticaux continus (Jacobsen et al., 1997 ; Laegdsmand et al., 1999, Rousseau et al., 2004).

La mobilisation des colloïdes en milieux naturels a été étudiée sur le terrain (expériences à petite échelle) et en laboratoire (expériences d'infiltrations sur des colonnes de sol non remaniées). Le plus souvent, ce type d'expériences consiste à appliquer de l'eau à la surface du sol et de mesurer la concentration des colloïdes dans les effluents collectés à l'aide de drains implantés dans le profil du sol (pour les expériences de terrain) ou bien à la base de la colonne (pour les expériences de laboratoire).

Une observation assez fréquente dans les expériences de mobilisation de colloïdes en milieu naturel est l'apparition d'un pic de colloïdes au début, et parfois à la fin, de l'événement pluvieux. Ces pics sont associés aux phases transitoires de l'écoulement (imbibition et drainage) ce qui a poussé certains auteurs à expliquer la mobilisation par l'effet d'adsorption à l'interface eau-air (El-Farhan et al., 2000; Saiers et al. 2003). Le pic de mobilisation du début est beaucoup plus grand que celui de la fin (au cas où ce dernier existe), et il est suivi d'une décroissance de la mobilisation vers un niveau bas et constant associée au régime d'écoulement permanent (Kaplan et al., 1993; Jacobsen et al., 1997; Ryan et al., 1998; El-Farhan et al., 2000; Schelde et al., 2002). La mobilisation relativement basse et constante pendant le régime permanent a été souvent expliquée par un phénomène de diffusion des colloïdes de la partie d'eau immobile vers la partie mobile (Ryan et Gschwend, 1994; Schelde et al., 2002). Ainsi la mobilisation de colloïdes serait faite en deux étapes : (i) détachement des colloïdes à partir de la matrice et (ii) diffusion des colloïdes depuis les sites de détachement vers l'eau mobile.

Il faut noter dans ce cadre que Schelde et al. (2002) proposent une deuxième diffusion de colloïdes pendant l'interruption de l'événement pluvieux (pause), cette fois-ci entre la croûte du macropore et l'eau immobile. Il s'en suit que plus la pause augmente, plus la concentration dans la phase immobile augmente jusqu'à atteindre la saturation. Ce scénario a permis à Schelde et al. (2002) d'interpréter leurs observations expérimentales notamment l'augmentation du pic de colloïdes au début d'un événement pluvieux si la pause qui le sépare de l'événement précédent augmente. Nous reviendrons sur cet aspect dans la troisième partie.

Mobilisation in-situ

La plupart des études expérimentales portant sur le transfert de particules ont été réalisées sur des sols remaniés (Gruesbeck et Collins, 1982; Wan et Wilson, 1994b; Roy et Dzombak, 1997; Grolimund et al., 1998; Gamerdinger et Kaplan, 2001a), ou sur des milieux poreux artificiels (Elimelech et O'Melia, 1990; Wan et Wilson, 1994a; Silliman, 1995; Roy et Dzombak, 1996a). Ces études en laboratoire consistent à injecter des particules colloïdales (microsphères de latex, particules en latex polystyrène avec des groupes fonctionnels spécifiques, silice pure ou particules colloïdales de sol mobilisées in situ) à la surface du sol, et à en observer la restitution en sortie de colonne après lessivage par infiltration d'une solution. Si on considère la suite injection-mobilisation-restitution, on voit bien que l'injection des colloïdes joue le rôle "d'entrée" du système, le transport et la mobilisation (dépôt ou détachement) jouent le rôle de "processus", et la restitution joue le rôle de "sortie" du système. Dans les études mentionnées ci-dessus, on considère donc que l'entrée

et la sortie du système sont connues. Il reste donc à caractériser le “processus” qui se déroule entre temps.

Très peu d’expériences en laboratoire ont été réalisées sur des colonnes de sol non remanié où les particules naturelles mobilisées in situ ont été récupérées et analysées (Kaplan et al., 1993; Jacobsen et al., 1997; Laegdsmand et al., 1999; Schelde et al., 2002; Rousseau, 2003 ; Rousseau et al., 2004). Il est clair que dans des cas pareils, l’entrée du système (la quantité initiale de colloïdes) est inconnue vu la méconnaissance, à priori, des colloïdes que le sol est capable de larguer naturellement. La seule information dont on dispose c’est la concentration de particules dans les effluents (la sortie du système), et il nous faut à partir de là construire des hypothèses sur l’entrée et sur le processus du système. C’est ce qui explique la rareté des modèles traitant la mobilisation in-situ des colloïdes (Jacobsen et al., 1997; Rousseau, 2003).

Etude du « pool » de particules mobilisables

Le problème de la quantification des particules mobilisables (et leur disponibilité) nous conduit logiquement à la problématique du « pool » (ou stock) de particules mobilisables et de sa possible régénération/épuiement pendant l’événement pluvieux lui-même ou pendant la période de pause qui sépare deux événements pluvieux consécutifs.

Très peu d’études portent sur l’épuiement et la régénération du « pool » (stock) de particules mobilisables durant et entre les événements pluvieux (Worrall et al., 1993 ; Grant et al., 1996 ; Worrall et al., 1999 ; Schelde et al., 2002). D’après les études de terrain, la régénération du « pool » de particules mobilisables pourrait être due à l’effet des cycles gel/dégel et à la dessiccation.

Grant et al. (1996) ont étudié les corrélations entre la concentration en matière particulaire drainée et plusieurs paramètres météorologiques. Leur étude a été menée sur quatre bassins versants ayant une taille entre 2.2 et 13.3 ha constitués principalement de dépôts sable argileux. D’après leurs résultats, la concentration en particules est corrélée significativement seulement à la quantité de précipitation accumulée.

Travaillant sur des mini-lysimètres (20 cm hauteur, 15 cm diamètre) contenant un sol sable argileux, Worrall et al. (1993) ont suggéré à partir de leurs observations que la concentration en colloïdes déclinait exponentiellement avec le temps durant les événements pluvieux. Ils ont émis l’hypothèse que l’épuiement du « pool » de colloïdes pouvait s’expliquer i) par le colmatage de la surface du sol dû à la formation d’une croûte, ii) par l’obstruction de macropores par lesquels les colloïdes sont transportés, et iii) par un épuiement des agrégats potentiellement altérables en surface.

Schelde et al. (2002) ont étudié la mobilisation de colloïdes dans des colonnes (20 cm hauteur, 20 cm diamètre) de sol sable argileux. Ils ont montré qu'il existait in situ une source apparemment illimitée de colloïdes mobilisables même après un lessivage prolongé. Ils ont également observé que le pic de concentration en particules dans les effluents survenant après l'interruption de la pluie augmentait en intensité avec l'allongement de l'intervalle de pause entre deux événements pluvieux successifs.

6. Objectifs et organisation de la thèse

Le but général de cette thèse est l'étude de la mobilisation in-situ et du transport préférentiel des colloïdes naturellement présents dans des colonnes de sol non remaniées sous des conditions non saturées. Particulièrement, le paramètre central de notre étude est l'évolution temporelle du « pool » de particules mobilisables pendant l'événement pluvieux lui-même et pendant la période d'interruption de la pluie (la pause) qui sépare deux événements pluvieux consécutifs.

En premier lieu, cette thèse s'inscrit dans le même cadre d'étude que celui de Rousseau (2003) qui a mis en évidence l'existence d'écoulements préférentiels de l'eau conduisant à un transport préférentiel de particules colloïdales. Travaillant sur des colonnes de sol de Versailles (Luvisol), Rousseau (2003) a observé une dynamique de mobilisation assez particulière et qui diffère du comportement classique souligné dans la littérature. En effet, dans la littérature on observe un pic initial de concentration suivi d'une diminution jusqu'à un niveau bas et constant. Dans les expériences de Rousseau (2003), le pic initial était suivi soit d'une augmentation, soit d'une diminution, soit d'une augmentation puis d'une diminution de la concentration en particules.

La différence du comportement des expériences de Rousseau (2003) nous a suggéré d'envisager l'étude de variabilité temporelle du stock de particules durant l'événement pluvieux. En se fondant sur les données expérimentales de Rousseau (2003), nous avons donc élaboré un modèle numérique à base physique qui prend en compte l'évolution temporelle du stock de particules pendant l'événement pluvieux lui-même. Ceci est fait en considérant que le détachement physico-chimique des particules à partir de la paroi du macropore suit une cinétique de premier ordre ayant un coefficient de détachement variable avec le temps (i.e. avec la quantité de particules déjà détachées). C'est l'objet de la **deuxième partie** de la thèse dans laquelle nous développons le modèle de mobilisation et de transport de particules. Ce modèle a été publié sous : Majdalani, S., E. Michel, L. Di Pietro, R. Angulo-Jaramillo, and M. Rousseau. 2007a. Mobilization and preferential transport of soil particles during infiltration:

A core-scale modeling approach. Water Resour. Res., 43, W05401, doi: 10.1029/2006WR005057.

L'histoire de la mobilisation n'est pas restreinte uniquement à l'événement pluvieux. Aussi nous nous sommes intéressés à l'étude du stock de particules pendant la pause entre deux événements. Dans la **troisième partie**, nous étudions alors l'effet de la durée de la pause sur la mobilisation ultérieure de particules, c'est-à-dire la mobilisation qui a lieu pendant l'événement pluvieux qui suit la pause étudiée. Les essais de pauses testées s'étalent sur un large intervalle allant d'une heure jusqu'à un mois et demi. L'étude de l'effet de la pause prend en compte les paramètres suivants :

- L'ordre des pauses (croissantes, régulières, et irrégulières),
- La force ionique de la solution infiltrante,
- L'intensité de la pluie imposée,
- Le lessivage intensif de la colonne,
- La nature du sol.

Dans cette troisième partie, nous adoptons une vision du « pool » de particules intermédiaire entre les deux approches actuelles : celle qui considère un « pool » illimité de particules et celle qui le considère de taille finie. En effet, comme sera présenté en troisième partie, nos résultats montrent que selon les conditions de pause le « pool » varie en augmentant ou en diminuant. Enfin, le modèle de transfert de particules élaboré dans la deuxième partie est appliqué aux données expérimentales de la troisième partie pour tester la capacité du modèle à reproduire la mobilisation de particules sur un nouveau sol (Calciisol d'Avignon) et de lier ses paramètres aux conditions expérimentales.

En analysant nos résultats, nous aboutissons à des conclusions portant sur les principaux mécanismes de mobilisation, et nous dégagons des perspectives de recherche pour une meilleure compréhension de l'histoire de mobilisation de particules.

DEUXIEME PARTIE

Evolution temporelle du « pool » de
particules mobilisables pendant l'événement
pluvieux : développement du modèle de
transport de particules

Présentation du modèle publié (Majdalani et al., 2007a)

Dans cette partie, nous explorons l'hypothèse de variation temporelle du stock de particules accessibles à la solution infiltrante au cours de l'événement pluvieux. Le but de cette partie est d'élaborer un modèle numérique à base physique qui décrit le transport préférentiel des particules dans des colonnes de sol non remaniées, en condition non saturée, et tout en prenant en compte :

- Les régimes transitoires de l'écoulement de l'eau (front d'imbibition et front de drainage), et le régime permanent,
- La dynamique de détachement de particules; cette dynamique reflétant l'évolution temporelle du stock disponible.

Pour cela, nous utiliserons les données expérimentales de Rousseau (2003) qui a mis en évidence l'existence d'écoulements préférentiels de l'eau ainsi que le transport préférentiel de particules associé. Nos hypothèses sont :

- Le transfert préférentiel de l'eau est décrit par une onde cinématique dispersive,
- Le transport de particules est décrit par une équation de convection dispersion avec un terme source/puit,
- Le terme puit est représenté par un attachement de particules suivant une cinétique de 1^{er} ordre avec un coefficient d'attachement constant,
- Le terme source consiste en un détachement de particules suivant une cinétique de 1^{er} ordre mais avec un coefficient de détachement variable avec le temps (i.e. avec la quantité de particules déjà mobilisées).

La cinétique de détachement proposée est dynamique. Elle prend en compte la possibilité de variation du stock de particules mobilisables avec le temps. Pendant un événement pluvieux, le stock initial de particules (i.e. la quantité de particules présente au début de l'événement pluvieux) peut :

- Soit augmenter de taille si suite à la mobilisation, d'autres zones du stock initialement inactives deviennent accessible à la solution infiltrante,
- Soit diminuer de taille si des stocks initialement actifs ne sont plus accessibles à la solution infiltrante suite au blocage de certains pores (filtration),

- Soit garder la même taille, et dans ce cas, on retrouve la cinétique de détachement classique de premier ordre.

Les paramètres de transfert hydrique et de mobilisation des particules du modèle sont estimés par la méthode inverse des Algorithmes Génétiques (AG) binaires. Un aperçu général de l'optimisation est donné en Annexe 1. Un exemple d'optimisation des paramètres du flux d'eau y est traité en détaillant les différentes étapes constituant une procédure d'optimisation d'un AG binaire.

Les données expérimentales ayant permis le développement du modèle sont issues de la thèse de Rousseau (2003). Les propriétés (physiques, chimiques, et minéralogiques) du sol utilisé (Luvisol de Versailles) sont résumées dans la Tableau II.1.

Le texte qui suit ci-dessous présente le modèle. Il s'agit de la publication : “ *Majdalani, S., E. Michel, L. Di Pietro, R. Angulo-Jaramillo, and M. Rousseau. 2007a. Mobilization and preferential transport of soil particles during infiltration: A core-scale modeling approach. Water Resour. Res., 43, W05401, doi: 10.1029/2006WR005057* ”.

Principales conclusions

Les simulations des particulogrammes par le modèle sont très satisfaisantes. La validation du modèle a montré que le pic initial de concentration est très sensible aux variations du coefficient de détachement de particules par l'effet d'accélération du flux d'eau. Les paramètres du modèle favorisant l'attachement et le détachement de particules ont été reliés à la force ionique de la solution infiltrante via une fonction seuil de type Fermi. La quantification des variations temporelles de la macroporosité du sol permettra d'améliorer la prédiction du modèle à travers une meilleure estimation des paramètres du modèle dépendant de la macroporosité.

| Horizon | H1 | H2 | H3 | H4 |
|---|---------|---------|---------|---------|
| Profondeur (cm) | 0 - 23 | 23 - 34 | 34 - 65 | 65 - 70 |
| <u>Propriétés chimiques</u> | | | | |
| Carbone organique (g. kg ⁻¹) | 9.34 | 4.80 | 4.28 | 2.97 |
| CaCO ₃ (g. kg ⁻¹) | 2 | < 1 | < 1 | 222 |
| pH | 7.5 | 7.3 | 7.7 | 8.5 |
| CEC (pH du sol) | 12.1 | 12.3 | 12.6 | 13.6 |
| Ca échangeable (cmol. kg ⁻¹) | 11.66 | 11.18 | 12.23 | 14.18 |
| Mg échangeable (cmol. kg ⁻¹) | 0.83 | 0.56 | 0.53 | 0.28 |
| K échangeable (cmol. kg ⁻¹) | 0.57 | 0.45 | 0.34 | 0.25 |
| Na échangeable (cmol. kg ⁻¹) | 0.03 | 0.04 | 0.04 | 0.07 |
| Fer libre (%) | 0.65 | 0.73 | 0.80 | 0.78 |
| Force ionique (mol.l ⁻¹) | 1.19E-2 | 7.51E-3 | 7.70E-3 | 1.99E-2 |
| <u>Propriétés physiques</u> | | | | |
| Argile (%) | 18.2 | 20.9 | 23.6 | 19.9 |
| Limon (%) | 60.2 | 60.7 | 59.4 | 63.8 |
| Sable (%) | 21.6 | 18.4 | 14 | 16.3 |
| Masse volumique sèche (g.cm ⁻³) | 1.56 | 1.54 | 1.47 | 1.50 |
| Porosité (cm ³ .cm ⁻³) | 0.41 | 0.42 | 0.44 | 0.43 |
| Porosité de drainage (cm ³ .cm ⁻³) | 0.027 | 0.038 | 0.030 | 0.019 |
| Teneur en eau à saturation (cm ³ .cm ⁻³) | 0.40 | 0.41 | 0.42 | 0.42 |
| Conductivité hydraulique à saturation (m.s ⁻¹) | 1.7E-5 | 3.2E-4 | 4.2E-4 | 2.6E-5 |
| <u>Propriétés minéralogiques</u> | | | | |
| Chlorite (%) | 2.07 | 3.15 | 3.28 | 2.16 |
| Smectite (%) | 25.86 | 45.84 | 30.82 | 70.89 |
| Interstratifié Illite/Smectite (%) | 8.62 | 6.29 | 0 | 11.86 |
| Illite (%) | 50.69 | 37.30 | 54.10 | 8.89 |
| Kaolinite (%) | 12.76 | 7.42 | 11.80 | 6.20 |

Tableau II.1 : Propriétés physiques, chimiques et minéralogiques des quatre horizons constituant le sol de Versailles (d'après Rousseau, 2003)

Mobilization and preferential transport of soil particles during infiltration: A core-scale modeling approach

Samer Majdalani,¹ Eric Michel,² Liliana Di Pietro,² Rafael Angulo-Jaramillo,^{1,3} and Marine Rousseau¹

Received 23 March 2006; revised 10 January 2007; accepted 19 January 2007; published 1 May 2007.

[1] Understanding particle movement in soils is a major concern for both geotechnics and soil physics with regard to environmental protection and water resources management. This paper describes a model for mobilization and preferential transport of soil particles through structured soils. The approach combines a kinematic-dispersive wave model for preferential water flow with a convective-dispersive equation subject to a source/sink term for particle transport and mobilization. Particle detachment from macropore walls is considered during both the steady and transient water flow regimes. It is assumed to follow first-order kinetics with a varying detachment efficiency, which depends on the history of the detachment process. Estimates of model parameters are obtained by comparing simulations with experimental particle breakthrough curves obtained during infiltrations through undisturbed soil columns. Both water flux and particle concentrations are satisfactorily simulated by the model. Particle mobilization parameters favoring both attachment and detachment of particles are related to the incoming solution ionic strength by a Fermi-type function.

Citation: Majdalani, S., E. Michel, L. Di Pietro, R. Angulo-Jaramillo, and M. Rousseau (2007), Mobilization and preferential transport of soil particles during infiltration: A core-scale modeling approach, *Water Resour. Res.*, 43, W05401, doi:10.1029/2006WR005057.

1. Introduction

[2] Biotic and abiotic soil colloids have been known for almost two decades to facilitate the transport of adsorbed contaminants through the vadose zone [McCarthy and Zachara, 1989]. Such particles migrating in the soil matrix can be filtrated by small pores, but preferential flow in soil macropores (e.g., invertebrate burrows) leads to rapid breakthrough of the colloids [Jacobsen *et al.*, 1997; Laegdsmand *et al.*, 1999; McKay *et al.*, 2000; Rousseau *et al.*, 2004a]. Quantification of particle transport through macroporous soils is thus essential for an accurate estimation of the potential risks of contaminant leaching into groundwater.

[3] Particle transport in both homogeneous and natural soils is usually modeled using the advection-dispersion equation. Most existing models differ from each other mainly in the particle detachment and attachment terms. These models assume constant particle mobilization kinetics throughout the entire infiltration event. The hypothesis of a constant detachment rate together with a first-order kinetics can describe fairly well the mobilization in model porous media with model colloids (e.g., glass beads or washed sand with latexes) or in a few natural systems. This is the case

whenever the breakthrough (particle concentration vs. time) curves present a simple pattern, generally an initial peak followed by a decrease to an almost constant level [Schelde *et al.*, 2002; Jacobsen *et al.*, 1997]. However, far more complex breakthrough curves have been reported. Kjaergaard *et al.* [2004] studied intact macroporous soil columns with different clay content and initial humidity. They showed that for high-humidity/low-clay soils, the leached particle concentration increases during the whole or part of the experiment. For the most humid/lowest clay soil, an initial peak is first followed by a decrease and then by a subsequent increase in the concentration. Similar variations with time of the leached colloid concentration were also reported by Laegdsmand *et al.* [1999], Rousseau *et al.* [2004b], and Levin *et al.* [2006] in undisturbed soil columns.

[4] The reasons for the above mentioned fluctuations are still unclear. Shear stresses at the macropore walls during flow onset, as well as drainage of colloids trapped at the air-water interface have been put forward to explain the initial particle concentration peak [Rousseau *et al.*, 2004b; Laegdsmand *et al.*, 1999]. The observed variations during steady water flow regime are still unexplained. We suggest here that spatial and temporal variation of particle detachment rate might explain these fluctuations. They might be related to changes in interparticle interactions, successive detachment from superposed layers, variation of surface area exposed to water flow etc. For example, the detachment rate might drop if interparticle bonds increase, if more tightly attached particles become accessible to infiltrating water, if particles irreversibly attach to immobile phase, or if clogging of the flow paths occurs leading to filtration of the colloids. Conversely, weakening of interparticle bonds or

¹Laboratoire d'Etude des Transferts en Hydrologie et Environnement, UMR 5564, CNRS, INPG, IRD, UJF, Grenoble, France.

²Unité Climat, Sol et Environnement, Institut National de la Recherche Agronomique, Avignon, France.

³Laboratoire de Sciences de l'Environnement, ENTPE, Vaulx-en-Vélin, France.

detachment of a thin crust of particles that reveals poorly attached particles might increase the global detachment rate.

[5] So far, a few modeling efforts have been devoted to take some of these variations into account. Spatial variations of detachment kinetics were considered by *Haggerty and Gorelick* [1995] in a dual porosity model. Transfers between all immobile and mobile phases were assumed to occur simultaneously, and the parameters of the kinetics equations were assumed to be statistically or physically distributed. The preceding approach was adapted by *Saiers and Lenhart* [2003]: They hypothesized that release of colloids trapped in thin water films is the main mode of mobilization of artificial colloids in unsaturated sand column. They accounted for the dimensions and shape variability of the thin films by dividing them into different compartments, each having a critical moisture content above which the colloids are released. This critical moisture content distribution is determined by fitting the model to the experimental data.

[6] The variability of bacteria adhesion to porous media walls as a function of their residence time has been accounted for in bacterial transport models using residence time dependant detachment rates. *Johnson et al.* [1995] modeled bacterial release using a residence time dependant detachment function. Detachment is set to zero when adsorption duration exceeds a given residence time and bacteria become irreversibly adsorbed. This concept of residence time dependant detachment rate was generalized and formalized by *Ginn et al.* [2002].

[7] Additionally, it is enlightening to mention the strategy adopted to model the adsorption efficiency decrease with increasing coverage on collecting surfaces. A time-dependant attachment rate, more precisely, a “dynamic blocking function” was used. This function can take different mathematical expressions depending on the adsorption model considered [*Ryan and Elimelech*, 1996].

[8] Another possible limitation of most existing models is that they hypothesize a steady water flow regime. Therefore the detachment/attachment terms are defined only within this hypothesis. However, under natural conditions, unsteady water flow is rather the rule than the exception. As reported by *Saiers and Lenhart* [2003, paragraph 4], variations in pore water velocity accelerate “colloid release rates beyond that which would be predicted on the basis of steady flow experiments.” *Saiers and Lenhart* as well as *Jarvis et al.* [1999] considered that colloid detachment rates depend linearly on pore water velocity. Among the few other works considering water flow transient regimes, *Govindaraju et al.* [1995] on the other hand considered that the acceleration of pore fluid creates additional stresses proportional to the rate of pressure increase across the soil. They used three different equations to model the three parts of their experimental colloid breakthrough curves (initial rapid concentration increase, subsequent decrease and final constant concentrations).

[9] In this paper, in a modeling effort to capture the complex nature of *in situ* colloid detachment, we focus on the time variability of the mobilization using a time-dependent detachment rate within the source term of a classical convection-dispersion equation. More precisely, by analogy to the “blocking function” mentioned above, a “detachment efficiency function” is introduced. It is

related to the concentration of already mobilized particles through a mathematical function that reflects the different possible successive variations of particle detachment rate during infiltrations. This approach expands the *Johnson et al.* [1995] residence time dependant detachment rate concept, and it differs from the *Haggerty and Gorelick* [1995] and *Saiers and Lenhart* [2003] studies, which considered mobilization from different compartments at the same time. We also take into account the unsteady flow regime considering that colloid detachment, attachment, and transport processes occur during both transient and steady state water flow regimes. This led us to consider the additional inertial forces resulting from the water flux acceleration during flow onset. This approach is more general than *Govindaraju et al.* [1995] because a single equation is used to model the entire colloid breakthrough curve. Finally, preferential water transfer in macropores during both transient and steady state regimes are described using the kinematic dispersive wave approach developed by *Di Pietro et al.* [2003]. The proposed model is used to simulate particle mobilization and transport in two undisturbed soil columns submitted to rainfall events consisting of both unsteady and steady water flow regimes. We confront the numerical solutions with the experimental data and relate the model parameters favoring attachment and detachment of particles to the ionic strength of the incoming rainfall solution.

2. Soil Column Experiments

[10] This paper uses the experimental results already described by *Rousseau* [2003] and *Rousseau et al.* [2004b]. Two undisturbed soil columns (A and B) of the same dimensions (diameter = 0.3 m, height = 0.69 m) were extracted from the experimental field Les Closeaux (Versailles, France). The soil is a tilled loamy clay soil developed in loess deposit with properties given in Table 1. A set of 12 (3) infiltration experiments was performed on the soil column A (B). Rainfalls of controlled intensity and duration were simulated at the top of the core. Drainage was let free at the bottom of the column. During each infiltration, the weight of the outflowing solution and its turbidity were recorded and converted to drained water flux and eluted particle concentration respectively. Each experiment was performed after a draining period varying from 5 hours to 1 month. Two rainfall intensities (11 and 23 mm h⁻¹), and ionic strength varying from deionized water to 10⁻¹ M of MgCl₂ were tested. Experimental conditions of both columns A and B are given in Table 2.

3. Description of the Model

3.1. Water Flow Equation and Numerical Solution

[11] To simulate preferential water flow in macropores we adopted the kinematic-dispersive wave model developed by *Di Pietro et al.* [2003]. All capillary pores are assumed to be initially saturated. Under these conditions, infiltrating water rapidly flows through connected macropores and contributes to fast drainage. The kinematic-dispersive wave model assumes that the water flux $u(z, t)$ within the macropores is related to the macropore volumetric water content $\theta_m(z, t)$ by

$$u(z, t) = b \theta_m(z, t)^a + v_\theta \frac{\partial \theta_m(z, t)}{\partial t} \quad (1)$$

Table 1. Chemical, Physical, and Mineralogical Soil Properties

| | Value |
|---|-----------------------|
| <i>Chemical Properties</i> | |
| Organic C, g kg ⁻¹ | 5.34 |
| CaCO ₃ , g kg ⁻¹ | 2 |
| PH | 7.5 |
| CEC, soil pH | 12.6 |
| Exchangeable Ca, cmol kg ⁻¹ | 12.31 |
| Exchangeable Mg, cmol kg ⁻¹ | 0.55 |
| Exchangeable K, cmol kg ⁻¹ | 0.40 |
| Exchangeable Na, cmol kg ⁻¹ | 0.04 |
| Free Fe, % | 0.74 |
| Ionic strength, mol l ⁻¹ | 1.17 10 ⁻² |
| <i>Physical Properties</i> | |
| Clay, % | 20.65 |
| Loam, % | 61.02 |
| Sand, % | 17.56 |
| Bulk density, g cm ⁻³ | 1.51 |
| Porosity, cm ³ cm ⁻³ | 0.42 |
| Water content at saturation, cm ³ cm ⁻³ | 0.41 |
| Hydraulic conductivity at saturation, m s ⁻¹ | 1.9 10 ⁻⁴ |
| <i>Mineralogical Properties</i> | |
| Chlorites, % | 2.66 |
| Smectites, % | 43.35 |
| Interstratified Illites/Smectites, % | 6.69 |
| Illites, % | 37.74 |
| Kaolinite, % | 9.54 |

where $u(z, t)$ is the water flux at instant t and depth z , a is a macropore flow distribution index, b [mm h⁻¹] is a conductance term [Rousseau *et al.*, 2004a], and ν_θ [mm] is the water dispersion coefficient. By combining equation (1) with the continuity equation, Di Pietro *et al.* [2003] obtained the following nonlinear kinematic-dispersive equation for water flowing through noncapillary pores

$$\frac{\partial u(z, t)}{\partial t} + c[u(z, t)] \frac{\partial u(z, t)}{\partial z} = \nu[u(z, t)] \frac{\partial^2 u(z, t)}{\partial z^2} \quad (2)$$

[12] The functions $c[u(z, t)]$ and $\nu[u(z, t)]$ represent, respectively, the convective celerity and the dispersivity

responsible for the distortion of the advancing water front. They are defined by

$$c[u(z, t)] = ab^{1/a} u(z, t)^{a-1/a} \quad (3)$$

$$\nu[u(z, t)] = \nu_\theta c[u(z, t)] \quad (4)$$

[13] If the boundary condition is a square water pulse input at the surface, the solutions to equation (2) are traveling dispersive waves that fit well experimental drainage hydrographs. The typical shape of traveling wave solution is shown in Figure 1a along with associated experimental data. The hydrographs may be described in three main stages: a rapid transient increase (stage I), a plateau when a steady state is reached (stage II), and a steep decrease when the input flux is ceased (stage III). Figure 1b shows the corresponding stages on the breakthrough curve of the same experiment.

[14] In order to obtain the water flux profile, equation (2) is numerically solved using the finite differences method with an explicit discretization of the spatial derivatives and with the following initial and boundary conditions:

$$\begin{aligned} u(z, t) &= 0, & z > 0, & t = 0, t > t_s \\ u(z, t) &= u_{in}(t), & z = 0, & 0 < t \leq t_s \end{aligned} \quad (5)$$

where $u_{in}(t)$ is a square pulse water flow imposed on the top surface of the soil and t_s is the duration of the square pulse imposed on the top surface of the soil. Water flow parameters a , b , and ν_θ is estimated using Binary Genetic Algorithm optimization procedure between simulated and experimental fluxes [Holland, 1975; Goldberg, 1989].

[15] The volumetric water content profile within the macropores corresponding to the optimum parameters is obtained by numerically solving equation (1), using the finite differences method, with the following initial and boundary conditions:

$$\begin{aligned} \theta_m(z, t) &= 0, & z > 0, & t = 0, t > t_s \\ \theta_m(z, t) &= \left(\frac{u_{in}(t)}{b} \right)^{\frac{1}{a}}, & z = 0, & 0 < t \leq t_s \end{aligned} \quad (6)$$

Table 2. Experimental Conditions for Both Columns A and B^a

| Rainfall Event Number | Time After Last Rainfall Event | Square Pulse Water Flow, mm h ⁻¹ | Duration of Square Pulse, min | Incoming Solution Nature | Incoming Solution Ionic Strength, mol L ⁻¹ | Eluted Particles Mass, mg |
|-----------------------|--------------------------------|---|-------------------------------|--------------------------|---|---------------------------|
| Col A3 | 1 month | 10.98 | 228 | MgCl ₂ | 1.64 × 10 ⁻³ | 263.48 |
| Col A4 | 1 week | 11.25 | 260 | deionized water | 7.02 × 10 ⁻⁶ | 1063.75 |
| Col A5 | 1 week | 11.13 | 225 | MgCl ₂ | 1.71 × 10 ⁻³ | 365.54 |
| Col A6 | 1 week | 22.88 | 110 | deionized water | 1.25 × 10 ⁻⁵ | 2605.75 |
| Col A8 | 5 hours | 22.13 | 180 | deionized water | 1.57 × 10 ⁻⁵ | 5790.52 |
| Col A10 | 1 week | 10.94 | 185 | MgCl ₂ | 1.40 × 10 ⁻³ | 1925.18 |
| Col A12 | 1 week | 11.20 | 180 | MgCl ₂ | 1.30 × 10 ⁻¹ | 65.51 |
| Col B1 | 1 month | 24.48 | 202 | deionized water | 10 ⁻⁷ | 2090.79 |
| Col B2 | 1 week | 11.45 | 181 | MgCl ₂ | 1.50 × 10 ⁻³ | 346.31 |
| Col B3 | 1 day | 11.48 | 120 | MgCl ₂ | 1.54 × 10 ⁻³ | 223.05 |

^aRuns 1, 2, 7, 9, and 11 of column A are not reported because of technical incidents during infiltration. Nevertheless, the original number of rainfall event was conserved in order to reflect the history of the soil column.

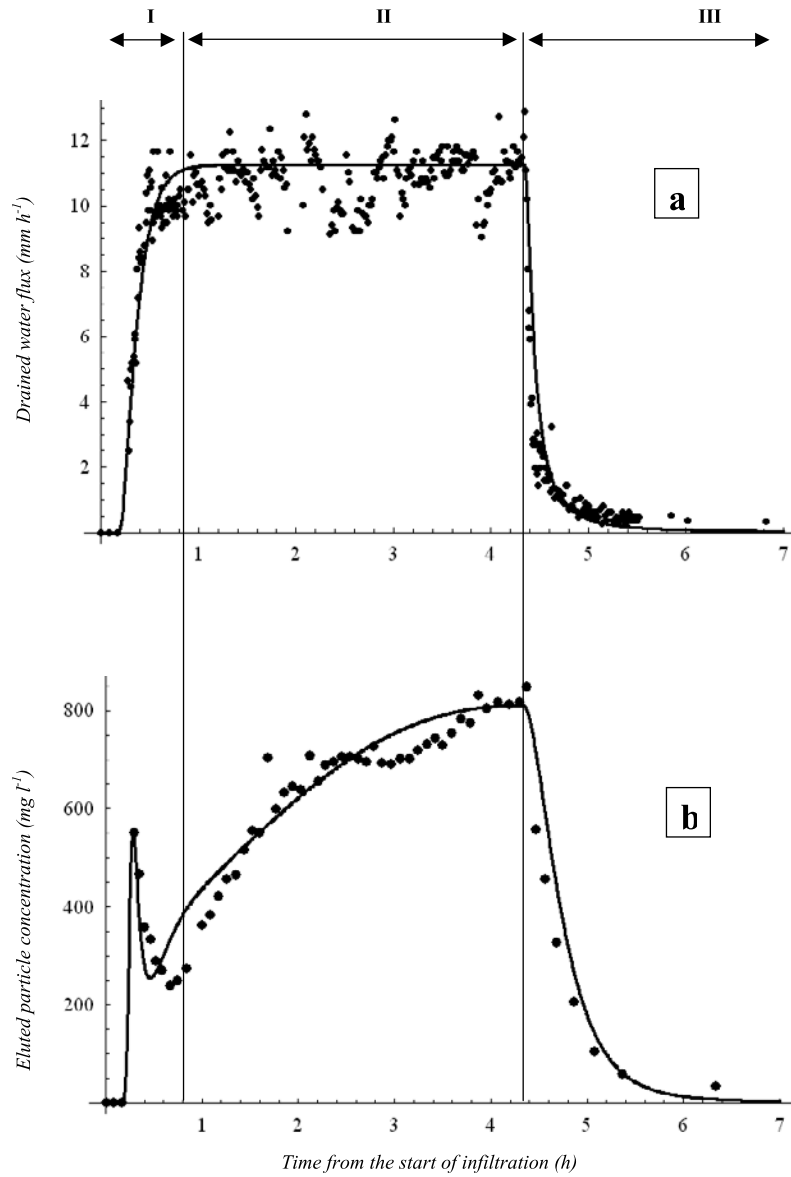


Figure 1. (a) Draining hydrograph and its characteristic stages I, II, and III. (b) Corresponding breakthrough curve. Circles show experimental data; line shows the simulation.

Both optimum water flux and volumetric water content profiles are subsequently used in the particle mobilization and transport equations.

3.2. Particle Mobilization and Transport Equations

[16] Particle transport in macropores is described by a convection-dispersion equation with source/sink terms:

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\theta_m(z, t)C(z, t))}{\partial t} = & - \frac{\partial(C(z, t)u(z, t))}{\partial z} \\ & + \frac{\partial}{\partial z} \left(\theta_m(z, t)D(z, t) \frac{\partial C(z, t)}{\partial z} \right) \\ & + S - P \end{aligned} \quad (7)$$

where $C(z, t)$ [mg L⁻¹] is the mass concentration of particles in the flowing solution at depth z and time t , $D(z, t)$ [mm² h⁻¹] is the particle dispersion coefficient, S [mg L⁻¹ h⁻¹] is the source term that accounts for particle detachment, and

P [mg L⁻¹ h⁻¹] is the sink term that describes particle deposition along macropore walls.

3.2.1. Dispersion Coefficient

[17] Most existing studies concerning the dispersion coefficient in both natural and artificial media have been done under steady state water flow conditions. The dispersion coefficient is generally expressed [Nielsen *et al.*, 1986] by

$$D_p = \zeta D_0 + \lambda v_{pore}^\eta \quad (8)$$

where D_p [mm² h⁻¹] is a constant dispersion coefficient under steady flow conditions, ζ is the tortuosity, D_0 [mm² h⁻¹] is the molecular diffusion coefficient, λ [mm] is the dispersivity, v_{pore} [mm h⁻¹] is the pore water velocity, and η is a coefficient approximately equal to 1 for saturated systems. Pore water velocity is given by $v_{pore} = u_p/\theta_p$, where u_p and θ_p are the constant water flux and the volumetric

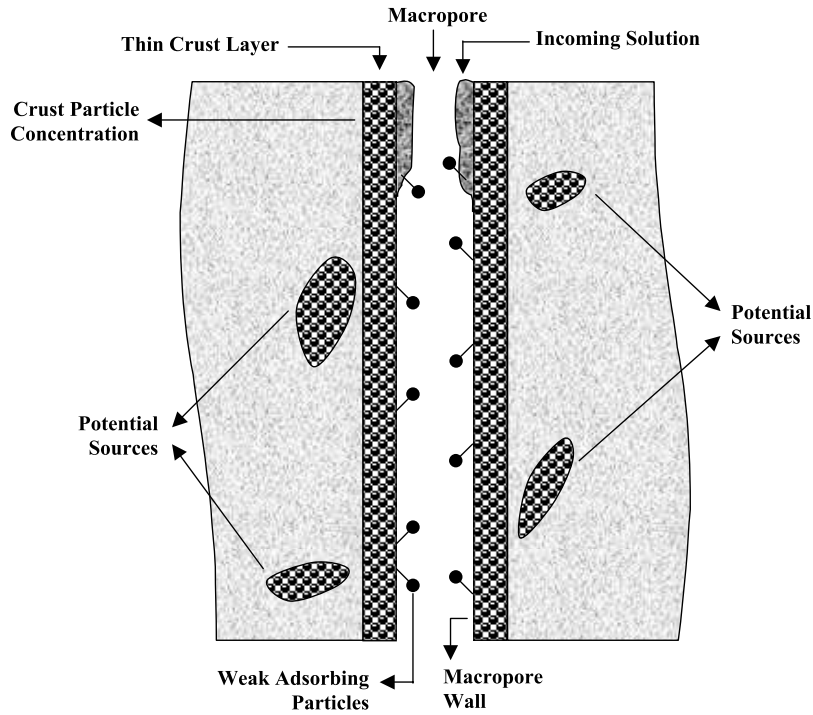


Figure 2. Model conception.

water content under steady state water flow conditions respectively. In our model, we consider that the dispersion coefficient $D(z, t)$ obeys Equation (8) even under unsteady and unsaturated water flow conditions. Bromide tracer experiments were performed on column A and B by Rousseau [2003] and Rousseau *et al.* [2004b]. Statistical moment analysis of the Br- breakthrough curves showed that the mean tracer residence time was 12 and 34 min in columns A and B, respectively. Residence times would have been more than 24 hours if calculated on the basis of Darcy's law. These observations indicate the presence of preferential flow, leading to rapid transport of solute through the macropore network, bypassing the soil matrix. Therefore flowing particles also bypass the matrix obstacles and tortuosity can be neglected. Equation (8) reduces to

$$D(z, t) = \lambda \frac{u(z, t)}{\theta_m(z, t)} \quad (9)$$

3.2.2. Sink Term

[18] The sink term P designates the deposit of transported particles along macropore walls. It is considered to be proportional to the particle concentration in the flowing solution according to

$$P = k_{att} \theta_m(z, t) C(z, t) \quad (10)$$

where $k_{att} [\text{h}^{-1}]$ is an attachment rate coefficient.

3.2.3. Source Terms and Assumed Mechanisms for Particle Detachment

[19] We assume that the pool of particles that may potentially be mobilized can roughly be divided into three compartments, represented schematically in Figure 2: (1) a thin crust layer at the soil surface and along macropore

walls directly in contact with the incoming solution, (2) more weakly adsorbed particles that might be loosely deposited on macropore walls, and (3) other sources within the soil matrix that eventually start to release particles when exposed to flowing water. The considered mechanisms of particle detachment are the hydrodynamic (inertial) forces exerted by the flowing solution on the solid walls, and a combination of shear and physicochemical forces that counteract the cohesive forces between particles.

[20] Following Laegdsmand *et al.* [1999] and Rousseau *et al.* [2004b], who suggested that the inertial hydrodynamic forces created by water acceleration at the onset of the flow might be responsible for increased colloid mobilization, we hypothesize that the first source term S_1 is proportional to the water flux acceleration:

$$S_1 = k_{acc} \frac{\partial u(z, t)}{\partial t} \quad \text{with} \begin{cases} k_{acc} > 0, & \text{if } t \leq t_s \\ k_{acc} = 0, & \text{if } t > t_s \end{cases} \quad (11)$$

where $k_{acc} [\text{mg L}^{-1} \text{ h mm}^{-1}]$ is a flux acceleration coefficient. This mechanism is effective only during the onset of infiltration (stage (I) of the drainage hydrograph). We hypothesize that it acts only on weakly adsorbed particles that have been loosened during the drying period.

[21] As for the thin crust layer compartment, we assume that the detachment of crust particles is mainly due to physicochemical interactions with the incoming solution following first-order kinetics. This mechanism is enhanced by shear forces along macropore walls due to the water flux, and thus the second source term S_2 is assumed to be proportional to $u(z, t)$. Additionally, the surface area of the crust in contact with the flowing solution depends on the water content within the macropores. Therefore S_2 is also proportional to $\theta_m(z, t)$. As mentioned in the introduction, we take into account the time variability of particle detach-

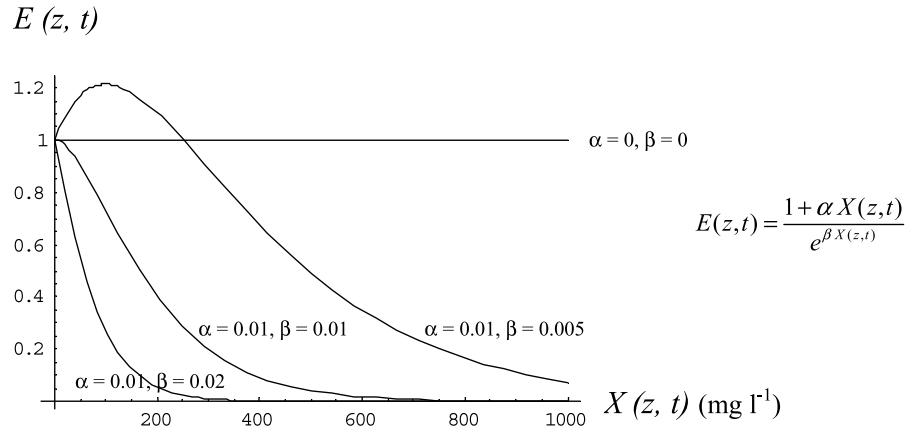


Figure 3. Different $E(z, t)$ behaviors as a function of $X(z, t)$ for four (α, β) parameter combinations.

ment introducing the detachment efficiency function $E(z, t)$ that will be detailed below. Finally, S_2 is expressed by

$$S_2 = k_{\text{det}} E(z, t) \theta_m(z, t) u(z, t) C^*(z, t) \quad (12)$$

where k_{det} [mm^{-1}] is the particle detachment coefficient, and $C^*(z, t)$ [mg L^{-1}] is the crust particle concentration. Similarly, attachment/detachment from macropore walls is expressed by

$$\frac{\partial C^*(z, t)}{\partial t} = -k_{\text{det}} E(z, t) \theta_m(z, t) u(z, t) C^*(z, t) + k_{\text{att}} \theta_m(z, t) C(z, t) \quad (13)$$

Equation (13) is based on an initial crust particle concentration $C_0^*(z)$ [mg L^{-1}] that undergoes changes during the infiltration event.

3.2.4. Detachment Efficiency: Definition and Mathematical Formulation

[22] In this study we consider that the experimentally observed fluctuating colloid breakthrough curves may be related to temporal and spatial variations of detachment rate. Our goal here is not to study the small-scale spatial variations of local detachment rates (resulting for example from local variability of inter particles forces) as done by *Haggerty and Gorelick* [1995]. We rather focus on the temporal variability of the detachment rate which is not taken into account in the aforementioned study.

[23] In the soil, particles in contact with water may not all detach simultaneously. Some are more tightly bound than others and might be detached only after a while: the detachment is kinetically limited. The physical processes leading to this delay may include dissolution of cements binding the particles together or change of inter particle ionic strength by ion diffusion. Furthermore, during the infiltration, the total number of particles that can be potentially detached in the soil column may vary with the total surface area of soil in contact with flowing water, as particles are removed from or deposited onto the pores walls, and as pores become clogged or unclogged. These phenomena may result in temporal variations of the detachment rate and strongly depend on the amount of already detached particles. For example the detachment of some particles can enhance the detachment of others if the

detached particles let colloids flow through a previously clogged pore, or if they loosen the connections between neighboring particles. Conversely, the detachment of some particles may disfavor the detachment of others (e.g., detached particles clog some water conducting pores yielding to filtration).

[24] In this paper, we model the temporal variations of the detachment rate introducing a “detachment efficiency function” $E(z, t)$. Since these variations depend on the amount of already detached particles, so does $E(z, t)$. The detachment efficiency function depends thus on time through a variable $X(z, t)$ describing the history of detachment process. Quantitatively, $X(z, t)$ [mg L^{-1}] is the cumulative concentration of particles detached at time t :

$$X(z, t) = \int_0^t k_{\text{det}} E(z, \tau) \theta_m(z, \tau) u(z, \tau) C^*(z, \tau) d\tau \quad (14)$$

[25] The possible variations of detachment rate suggest the following shape variations of $E(z, t)$: (1) constant $E(z, t)$ value for variable $X(z, t)$ reflecting a classical first-order kinetics, (2) continuous decrease of $E(z, t)$ with increasing $X(z, t)$ (detachment of some particles disfavors the detachment of others), and (3) increase of $E(z, t)$ with increasing $X(z, t)$ (detachment of some particles enhances the detachment of others) followed by a decrease for large $X(z, t)$ values. This decrease is due to the fact that particles cannot be offered infinitely to the soil solution and, after an infinite mobilization process, particles stocks are exhausted yielding $E(z, t) \rightarrow 0$ if $X(z, t) \rightarrow \infty$. In order to satisfy these conditions, we propose to relate $E(z, t)$ to $X(z, t)$ through the following function:

$$E(z, t) = \frac{1 + \alpha X(z, t)}{e^{\beta X(z, t)}} \quad (15)$$

where α [$\text{mg}^{-1} \text{L}$] and β [$\text{mg}^{-1} \text{L}$] are two positive parameters. Figure 3 shows the behaviors of $E(z, t)$ as a function of $X(z, t)$ for four (α, β) parameter combinations. $E(z, t)$ shows a maximum for $X(z, t) = X_{\text{max}}(z, t) = (\alpha - \beta) / (\alpha\beta)$. Three cases may be considered according to the relative values of α and β : (1) $\alpha = \beta = 0$, this case reduces to a classical first-order kinetics with constant detachment efficiency $E(z, t) = 1$; (2) $0 < \alpha < \beta$, $X_{\text{max}}(z, t)$ is strictly positive, $E(z, t)$ increases, reaches a maximum at $X_{\text{max}}(z, t)$

and then decreases for $X_{\max}(z, t) < X(z, t)$; (3) $0 < \alpha \leq \beta$ in this case, $X_{\max}(z, t)$ is either null or negative, and $E(z, t)$ always decreases for increasing positive $X(z, t)$ values.

3.2.5. Numerical Solution

[26] Equations (7), (13), (14), and (15) form the particle mobilization and transport model. They are numerically solved in a simultaneous way using the finite differences method with an implicit discretization of spatial derivatives for the convection-dispersion equation, and with the following initial and boundary conditions:

$$\begin{aligned} C(z, t) &= 0, & z > 0, & t = 0 \\ C^*(z, t) &= C^*o(z), & z > 0, & t = 0 \\ X(z, t) &= 0, & z > 0, & t = 0 \end{aligned} \quad (16)$$

[27] Particle transport model parameters k_{acc} , k_{att} , k_{det} , α , and β are estimated using binary genetic algorithm optimization procedure between simulated and experimental eluted particle concentrations.

4. Parameter Estimation–Sensitivity Analysis

4.1. Dispersivity Estimation

[28] In field studies, the average dispersivity λ is about 3 cm, which is larger than the λ measured in laboratory soil columns [Bresler and Laufer, 1974; Nielsen and Biggar, 1962]. According to Jury *et al.* [1991], typical values of λ for soil columns range from 0.5 to 2 cm. The maximum dispersivity value used by Bresler and Dagan [1983] was 3 cm, which is in the range of the studies reviewed by Sposito *et al.* [1986]. For our soil columns, we consider a medium λ value in the range given by the literature: $\lambda = 1.5$ cm.

4.2. Initial Estimation of the Macropore Crust Particle Concentration

[29] The initial macropore crust particle concentration can be (1) calibrated for each single rainfall event or (2) fixed at the beginning of the first rainfall event, the final crust concentration state of each rainfall event being thus considered as the initial concentration state of the following event. The first alternative is commonly used in the literature [Roy and Dzombak, 1996; Jacobsen *et al.*, 1997; Schelde *et al.*, 2002] but can lead to initial concentration values for some rainfall events that are higher than that of previous events. We adopted the second alternative which is more suitable to describe successive rainfall events. We first suppose that the primitive macropore crust particle concentrations in columns A and B are identical because the two soil columns were extracted near each other, and call this value C_{prim}^* . We then estimate this value: it is at least greater than the cumulative mass of eluted particles during all simulated rainfall events divided by the column soil volume. On the basis of eluted particles mass for column A (Table 2), we get $C_{prim}^* > 450$ mg L⁻¹. In order to avoid overestimation of C_{prim}^* , we decided to adopt the lowest value of C_{prim}^* higher than 450 mg L⁻¹ that can lead to successful simulations of the set of successive rainfall events. C_{prim}^* values of 500 and 1000 mg L⁻¹ were tested but they were not able to reproduce the whole set of rainfall events. We thus chose $C_{prim}^* = 1500$ mg L⁻¹. Studying in situ colloid release from intact soil columns (the same context as in this study), Jacobsen *et al.* [1997] found that the calibrated initial concentration on the macropore wall

for particles smaller (respectively greater) than 10 μ m varied between 490 and 4000 mg L⁻¹ (respectively between 100 and 180 mg L⁻¹). In our experiments, the predominant size of particles in the outflow solution is approximately 0.45 μ m [Rousseau *et al.*, 2004b]. Our estimate of C_{prim}^* concurs thus with Jacobsen *et al.* [1997] values.

4.3. Sensitivity Analysis

[30] Water flow parameters as well as particle transport parameters, can take any real positive value. To limit the parameters range of variations, interval values must be defined for each parameter. Moreover, inside these intervals, very close parameter values produce almost the same simulations. We prevent the GA from performing useless evaluations by dividing intervals into small steps in such a way that the simulated curve is sensitive to a one step parameter change. Parameters sensitivity analysis was used to determine the size of each interval.

4.3.1. Water Flow Parameters

[31] On the basis of existing literature values [Di Pietro *et al.*, 2003; Rousseau, 2003] and on the sensitivity analysis done by Di Pietro *et al.* [2003], we defined the following parameter intervals for water flow parameters a , b , and ν_θ : $a \in [1, 4.1]$ with a step of 0.1, $b \in [10^5, 10^{11.2}]$ with a step of $10^{0.2}$ [mm h⁻¹], and $\nu_\theta \in [150, 900]$ with a step of 50 [mm].

4.3.2. Particle Transport Parameters

[32] In this study, k_{det} is expressed in [mm⁻¹], while in the literature it is generally expressed in [h⁻¹]. We compare our detachment coefficient with other existing literature values, by multiplying k_{det} [mm⁻¹] by the water flow imposed on the top surface of the soil $u_m(t)$ [mm h⁻¹] to obtain $k_{det}u_m(t)$ expressed in [h⁻¹]. Literature values for colloids attachment/detachment rates [Roy and Dzombak, 1996; Jacobsen *et al.*, 1997; Kretzschmar *et al.*, 1997; Camesano *et al.*, 1999; Zhuang *et al.*, 2004] show that the detachment (respectively attachment) rates vary between 0.31 and 50 h⁻¹ (respectively 0.14 and 100 h⁻¹). These constraints were adopted for our attachment/detachment rate parameters. Consequently, we let both $k_{det}u_m(t)$ and k_{att} vary between 0.1 and 75 h⁻¹.

[33] Sensitivity analysis was done for particle transport parameters (Figure 4) in order to determine both parameter interval steps and the influence of each parameter on the simulated breakthrough curve. Figures 4a–4e shows parameter increments that can produce appreciable changes in simulation curves. It was noticed that, to be sensitive, parameter increment must increase along with the increasing parameter value. We thus chose increment steps in the order of the decimal of parameter value: a parameter value of 0.2 for example will be incremented by 0.01 to yield 0.21, and a parameter value of 3 will be incremented by 0.1 to yield 3.1. Particle transport parameters were thus varied inside the following intervals: $\alpha \in [0, 0.0001, \dots, 0.75]$ [mg⁻¹ L], $\beta \in [0, 0.0001, \dots, 0.75]$ [mg⁻¹ L], $k_{acc} \in [0, 0.001, \dots, 7.5]$ [mg L⁻¹ h mm⁻¹], $k_{att} \in [0, 0.1, \dots, 75]$ [h⁻¹], and $k_{det}u_m(t) \in [0, 0.1, \dots, 75]$ [h⁻¹].

5. Results and Discussion

5.1. Water Flow: Comparisons Between Simulations and Experimental Data

[34] The results of the water flux simulations (Figure 5) show the following.

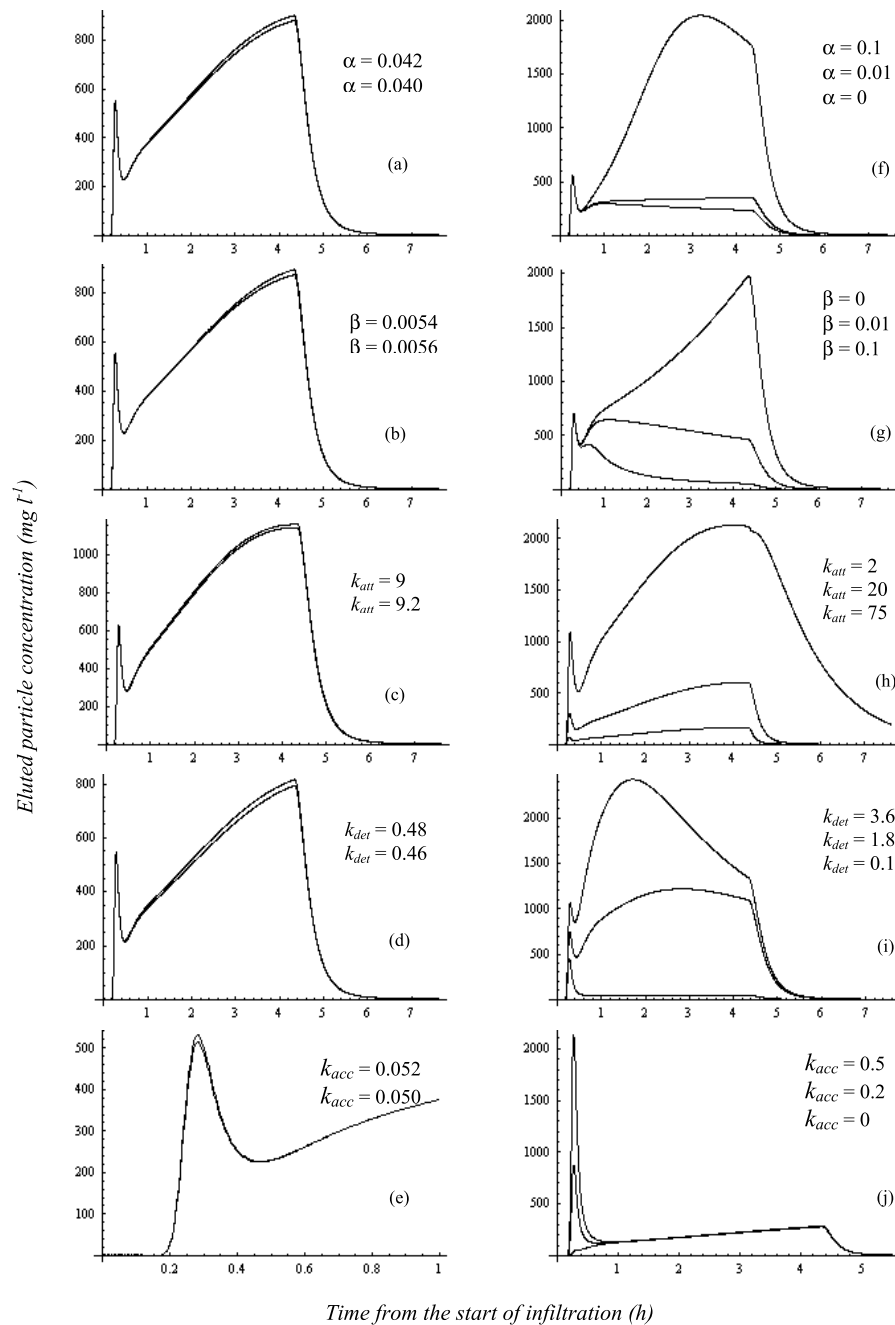


Figure 4. (a–j) Sensitivity analysis for particle transport model parameters varying in both fine and large interval values. The order in which parameters are written (from top to bottom) corresponds to that of the associated curves. Figure 4e was plotted between 0 and 1 h in order to show the peak variation.

[35] 1. Stage I of the hydrograph corresponds to rapid flow increase is well simulated. The model correctly predicts the breakthrough of the wetting front. The dispersive phenomenon which is expressed by the smooth curvature at the end of stage I is well represented in all columns. This reinforces the hypothesis of *Di Pietro et al.* [2003] concerning the dispersion of the wetting front due to variation in pore water velocities in different pores.

[36] 2. Stage II corresponds to the steady regime reflects the square pulse water flow $u_{in}(t)$ imposed on the column surface.

[37] 3. Stage III corresponds to the turn off of irrigation. The tail of the falling limb is well represented, except for column A, experiment 12 (hereinafter experiments will be abbreviated as, e.g., Col A12), Col B1, and Col B3 where simulations underestimate the experimental water flux.

[38] Water flow parameters estimated by the GA optimization procedure (Table 3) indicate that a varies between 2.1 and 3.8, b varies between $10^{5.6}$ and $10^{10.2}$ mm h⁻¹, and ν_θ varies between 200 and 800 mm. These values are in good agreement with values found in literature [*Di Pietro et al.*, 2003; *Rousseau*, 2003; *Rousseau et al.*, 2004a].

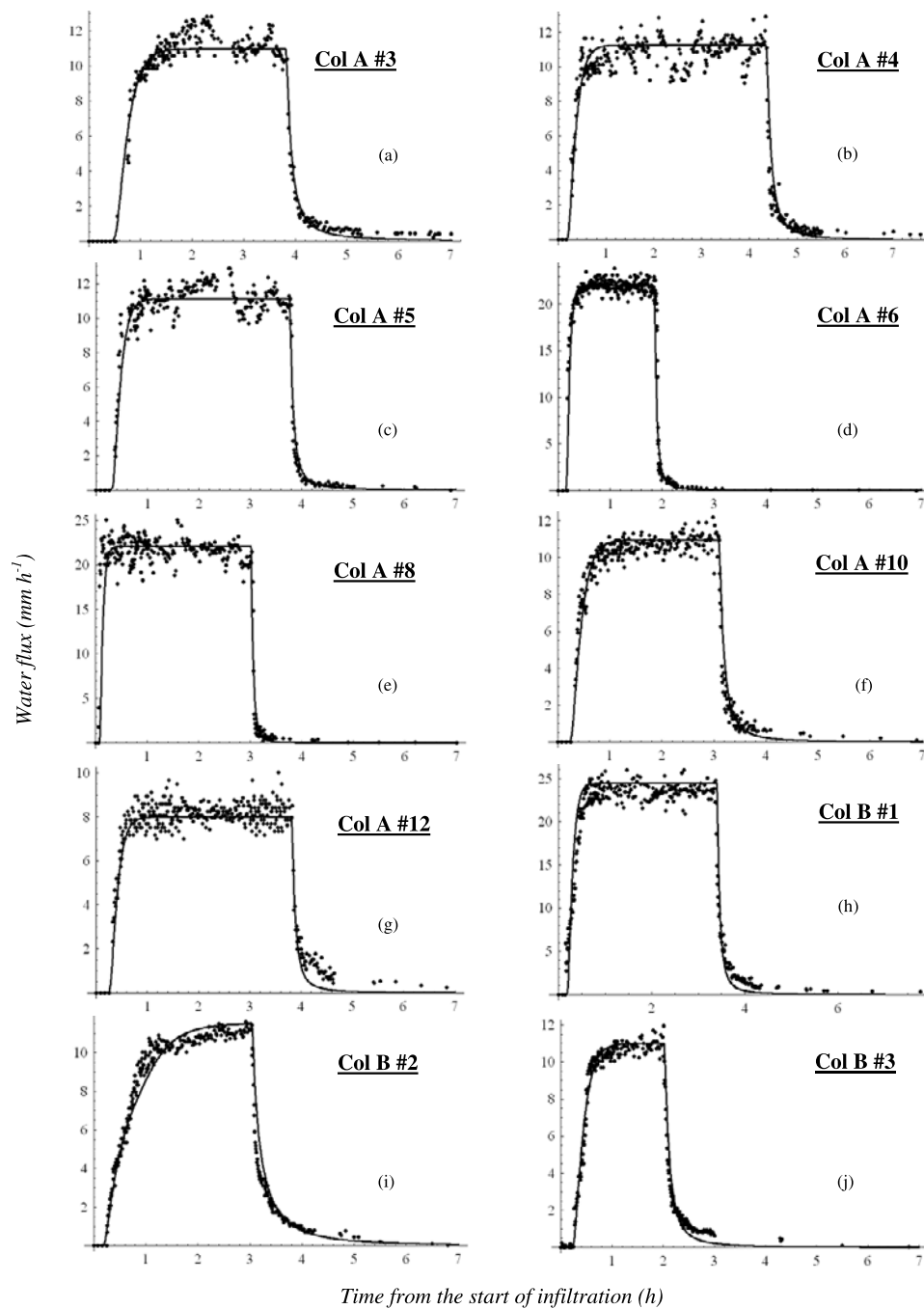


Figure 5. Water flux simulations. Circles show experimental data; line shows the simulation.

5.2. Particle Transport: Relation to Existing Modeling Efforts

[39] *Johnson et al.* [1995] modeled bacterial detachment kinetics in homogeneous systems using a dynamic rate of detachment, where bacterial release (source term) is set to zero after a specified residence time. In the same way, in natural systems, detachment efficiency can drop due to pores clogging and subsequent particle filtration for example. Conversely, particles that were not yet on the water flow path can later start to be mobilized. Also, water flow can weaken the cohesion of particles that were previously too tightly bound to be mobilized. This means that source terms that were not taken into account will be different from

zero at subsequent times. These two tendencies (activation/deactivation of source term) coexist continuously in natural systems during the same rainfall event, and the observed concentration of leached particles is the result of these opposite phenomena. Our concept of a detachment efficiency $E(z, t)$ is capable of reflecting and summarizing the essential of this dynamic with only two adjustable parameters.

[40] The use of mathematical functions to describe parameter variability is ubiquitous in transport literature. *Ginn* [2000b] illustrated the use of the exposure time theory [*Ginn*, 2000a] expanding and refining *Johnson et al.*'s [1995] work on residence time dependant detachment rate:

Table 3. Optimized Values of Water Flow and Particle Transport Parameters

| Rainfall Event Number | Water Flow Parameters | | | Particle Transport Parameters | | | | |
|-----------------------|-----------------------|--------------------------|-------------------|---|-----------------------------|---------------------------------------|-------------------------------|------------------------------|
| | a | b , mm h ⁻¹ | ν_θ , mm | k_{acc} , mg L ⁻¹ h mm ⁻¹ | k_{att} , h ⁻¹ | $k_{det} u_{in}(t)$, h ⁻¹ | α , mg ⁻¹ L | β , mg ⁻¹ L |
| Col A3 | 3.2 | 10 ⁸ | 450 | 0.65 | 61 | 7.46 | 0.0031 | 0.0023 |
| Col A4 | 2.1 | 10 ⁶ | 400 | 0.045 | 8 | 2.25 | 0.04 | 0.008 |
| Col A5 | 3.8 | 10 ^{10.2} | 600 | 0.084 | 4 | 0.88 | 0.0093 | 0.0015 |
| Col A6 | 2.5 | 10 ^{7.8} | 200 | 0.017 | 6.8 | 14.87 | 0.036 | 0.013 |
| Col A8 | 2.6 | 10 ^{8.6} | 450 | 0 | 9.8 | 61.96 | 0.009 | 0.0052 |
| Col A10 | 2.7 | 10 ⁷ | 800 | 0.52 | 19 | 27.35 | 0.0035 | 0.0023 |
| Col A12 | 3.5 | 10 ^{9.8} | 700 | 0.062 | 9.7 | 4.14 | 0.0045 | 0.6 |
| Col B1 | 2.8 | 10 ^{7.8} | 400 | 0.001 | 10 | 2.25 | 0.052 | 0.0047 |
| Col B2 | 2.1 | 10 ^{5.6} | 650 | 0.03 | 9.9 | 1.94 | 0.005 | 0.0037 |
| Col B3 | 2.5 | 10 ^{6.6} | 700 | 0.003 | 8 | 1.60 | 0.015 | 0.0085 |

The variations of detachment rate with bacteria residence time onto the porous media material are modeled using a two parameter smoothed version of the Heaviside function. Weiss *et al.* [1998] observed that the resistance to desorption of latex particles from a glass surface increases with adhesion duration. They used a two parameter gamma distribution of the potential well depth at the binding sites to calculate the desorption rate distribution causing the observed adhesion time distribution. Haggerty and Gorelick [1998] used a two parameters lognormal distribution to model the variability of organic compounds diffusion coefficient in unsaturated porous media. Grolimund *et al.* [2001] studied colloid release from intact soils using generalized exponential and power law type distributions of detachment rate to describe experimental data that could not be modeled by first-order kinetics. In these studies, experimental data are better described using statistical distributions of the relevant rate than simple first-order kinetics. In the same

way, in this study we chose to describe the time variability of colloid detachment using the two parameter $E(z, t)$ function. The proposed mathematical form of $E(z, t)$ (equation (15)) allows to model colloid breakthrough curves that cannot be described by a first-order kinetics when parameters α and β are different from zero, but can be reduced to a first-order kinetics when $\alpha = \beta = 0$. Other mathematical forms of the detachment efficiency can be tested in the future to check if they can better describe the experimental curves.

5.3. Particle Transport: Comparisons Between Simulations and Experimental Data

[41] Classical first-order kinetic ($\alpha = \beta = 0$) along with no flux acceleration ($k_{acc} = 0$) during flow onset was first used to simulate the experimental data. The initial peak as well as the subsequent rise in particle concentration are not captured by this model (e.g., Col A4 in Figure 6a). Adjustment of the

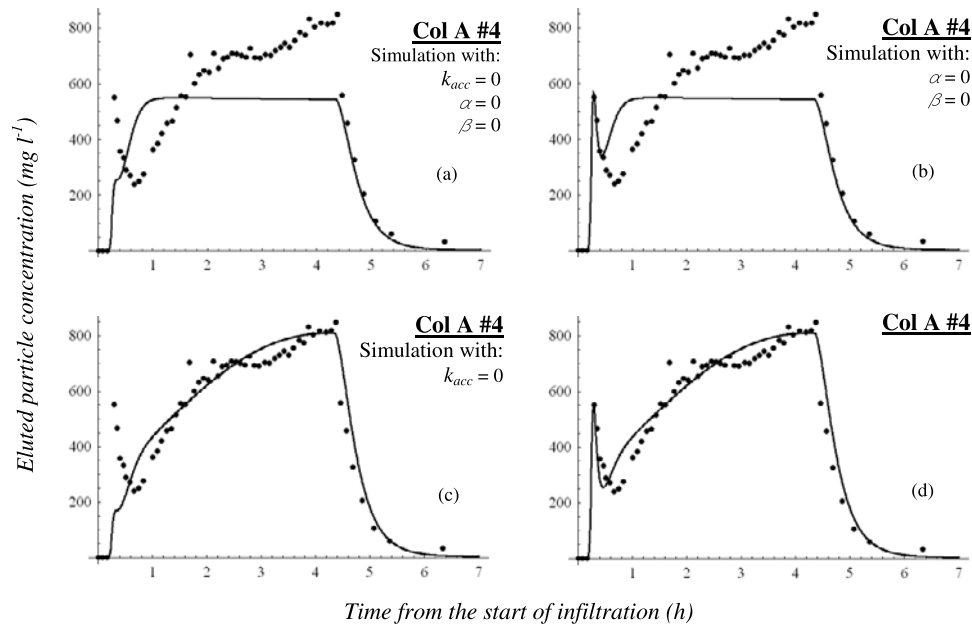


Figure 6. (a) Simulation using $k_{acc} = 0$ [mg l⁻¹ h mm⁻¹], $\alpha = 0$ [mg⁻¹ L], and $\beta = 0$ [mg⁻¹ L]. (b) Simulation using $\alpha = 0$ [mg⁻¹ L], $\beta = 0$ [mg⁻¹ L], and best fit for $k_{acc} = 0.045$ [mg l⁻¹ h mm⁻¹]. (c) Simulation using $k_{acc} = 0$ [mg l⁻¹ h mm⁻¹], best fit for $\alpha = 0.04$ [mg⁻¹ L], and $\beta = 0.008$ [mg⁻¹ L]. (d) Model simulation, best fit for $k_{acc} = 0.045$ [mg l⁻¹ h mm⁻¹], $\alpha = 0.04$ [mg⁻¹ L], and $\beta = 0.008$ [mg⁻¹ L]. Circles show experimental data; line shows the simulation. Here k_{det} and k_{att} were free to vary for all simulations.

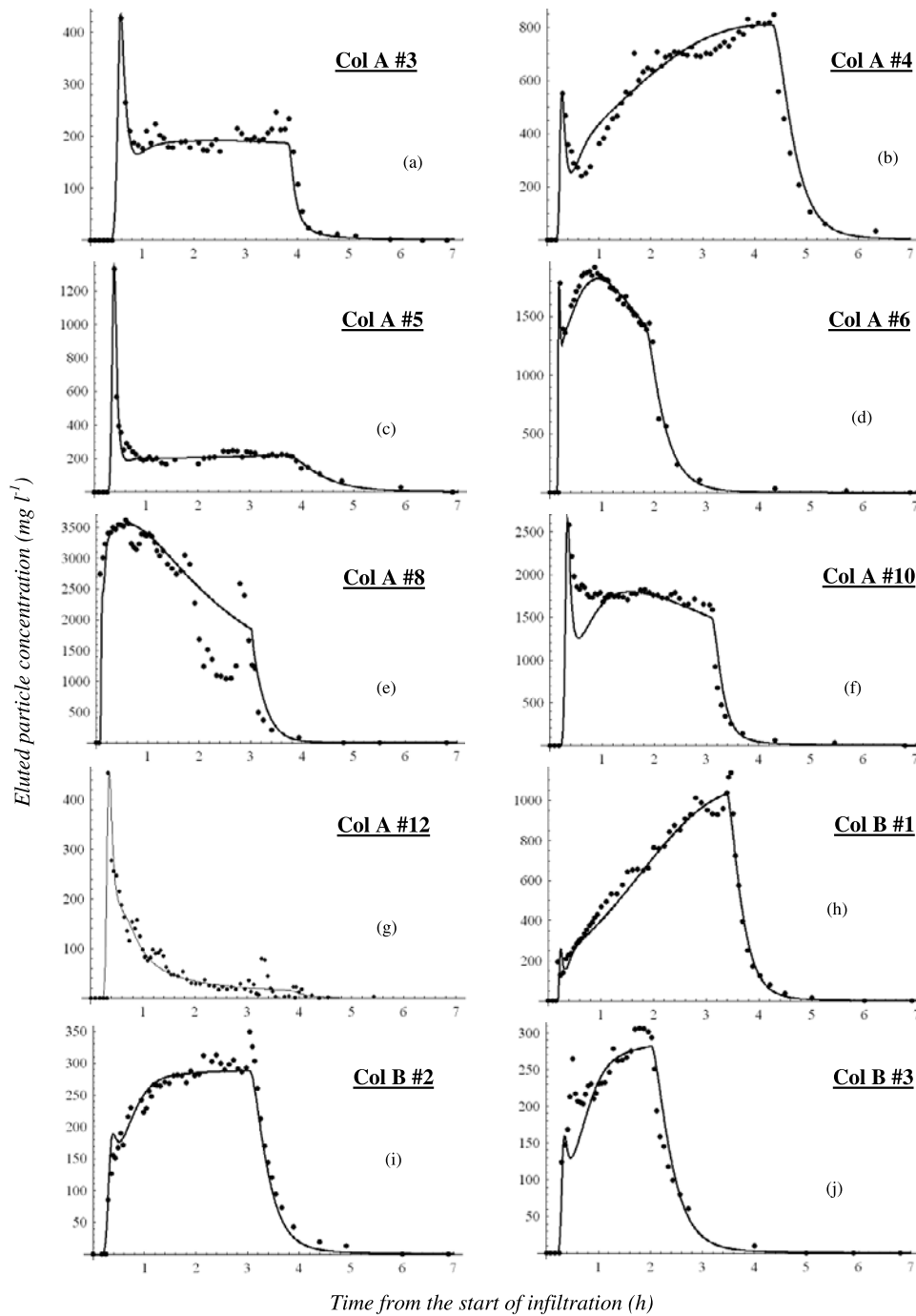


Figure 7. Particle transport simulations. Circles show experimental data; line shows the simulation.

k_{acc} parameter allows a good reproduction of the initial peak (Figure 6b) while the use of the efficiency function in the model allows a better simulation of the colloid concentration increase during the steady flow regime (Figure 6c). Finally, taking into account the acceleration effect as well as the efficiency function yields a good simulation of experimental data (Figure 6d). The model was fitted to all experimental breakthrough curves for columns A and B. The model ability to describe experimental data for the three stages of the breakthrough curves (Figure 7) is discussed below.

[42] 1. In stage I the adjustment of the k_{acc} parameter allows a good reproduction of the peak and the steep rising limb of the colloid breakthrough curve every time a peak is present. Conversely, the absence of peak in Col A8 and all column B infiltrations is reproduced with values of k_{acc} close to zero. Govindaraju *et al.* [1995] attributed the rising limb of their breakthrough curves to the temporal variation of the pressure applied across the soil. Their model yielded premature particle breakthrough and overestimated the initial peak compared to their experimental data. Our simulations describe this part of the curve better than the

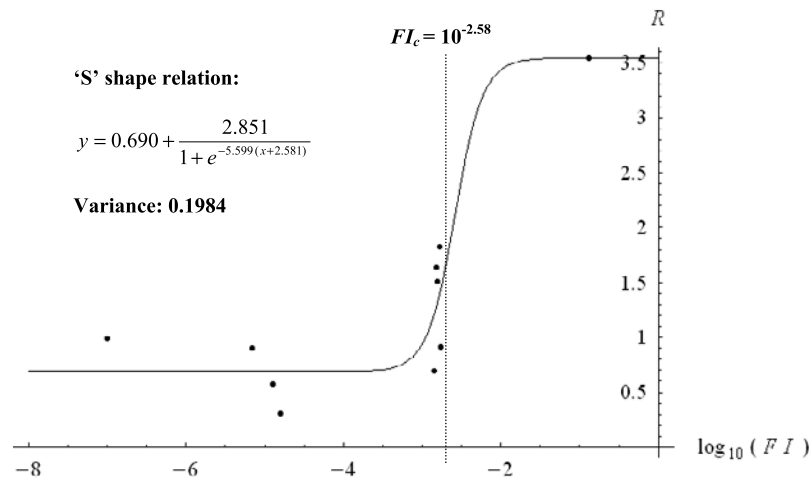


Figure 8. Fermi-type relation between R ratio and the base 10 logarithm of the incoming solution ionic strength FI .

simulations of Govindaraju *et al.* [1995] and show that the hypothesis of particle mobilization due to flux acceleration is more appropriate to reflect stage I than the hypothesis of temporal variation of the pressure applied across the soil.

[43] 2. Stage II corresponds to the steady water flow regime and exhibits different particle leaching trends with time: (1) an increasing eluted particle concentration (Col A4, Col B1, and Col B2) reflecting the eventuality that the detachment of some particles promotes the detachment of others as time is running, (2) an increase followed by a decrease in eluted particle concentration (Col A6), or even a continuous decrease in eluted particle concentration (Col A10 and Col A12), as for example, more tightly attached particles become in contact with flowing water, or particles get filtrated due to pore clogging, and (3) a constant eluted particle concentration (Col A3, Col A5) reflecting classical first-order kinetics. These patterns are well simulated except for infiltration Col A4 and Col A10 where the eluted particle concentration is respectively overestimated and underestimated at the beginning of stage II.

[44] 3. In stage III, after the infiltration turn off, the convective transport gradually stops, resulting in a decreasing flow rate and in a fast decrease in particle concentration flux as well. The falling limb is well reproduced for all rainfall events.

[45] Particle transport parameters estimated by the GA optimization procedure are given in Table 3. The detachment rate varied between 0.88 and 62 h^{-1} with a majority of values below 10 h^{-1} . These values are comparable with those found by Jacobsen *et al.* [1997] in intact macroporous soil columns and Roy and Dzombak [1996] in natural sands for in situ colloid mobilization. The attachment rate varied between 4 and 61 h^{-1} with a majority of values below 10 h^{-1} . Published attachment rate estimates obtained in experimental situations close to ours are scarce, but our values have the same order of magnitude as the estimates obtained with colloids introduced in repacked soil columns [e.g., Kretzschmar *et al.*, 1997; Zhuang *et al.*, 2004]. While the attachment rate estimates show a tendency toward a value around 9 h^{-1} (Table 3), the detachment rate estimates are more scattered.

[46] In order to predict the preferential transport of particles through undisturbed natural soils, model param-

eters should be related to experimental conditions and to soil properties. In our infiltration experiments, the main changing experimental conditions were the water flux and the incoming solution ionic strength. Physicochemical attachment/detachment on macropore walls (equation (13)) is influenced by the ionic strength of the incoming solution, and so will be the particle transport parameters (k_{att} , k_{det} , α , and β). Sensitivity analysis shows that increasing k_{att} and β enhances particle deposit (Figures 4g and 4h), while increasing k_{det} and α favors particle release (Figures 4f and 4i). The ratio R [mm h^{-1}] of parameters promoting particle deposit to parameters promoting particle release is

$$R = \frac{\beta k_{att}}{\alpha k_{det}} \quad (17)$$

R was calculated for all experiments and plotted versus the ionic strength FI . As a first step toward the prediction of the functional dependence of R on FI , we adjusted data points by a Fermi-type function (Figure 8) according to

$$\frac{R - R_{min}}{R_{max} - R_{min}} = \frac{1}{1 + e^{-\delta (\log_{10}(FI) - \log_{10}(FI_c))}} \quad (18)$$

where $R_{min} = 0.690 \text{ mm h}^{-1}$ and $R_{max} = 2.851 \text{ mm h}^{-1}$ are respectively minimum and maximum values of R ratio, $\delta = 5.599$ is a form parameter, FI [M] is the ionic strength of the incoming solution, and $FI_c = 10^{-2.581}$ M is the critical ionic strength threshold around which R ratio passes from R_{min} to R_{max} . To assert relation (18), more infiltration tests need to be done with varying ionic strengths, mainly for high values of FI . Relation (18) reflects the fact that lower incoming solution ionic strength enhances particle leaching. It is also consistent with the hypothesis proposed by Khilar and Fogler [1984], suggesting that ionic strength acts on particle mobilization as a threshold mechanism.

6. Validation of the Model

[47] In order to test the validity of the model, two predictive simulations were run for Col A5 (Figure 9a) and Col B3 (Figure 9b) using all five particle transport

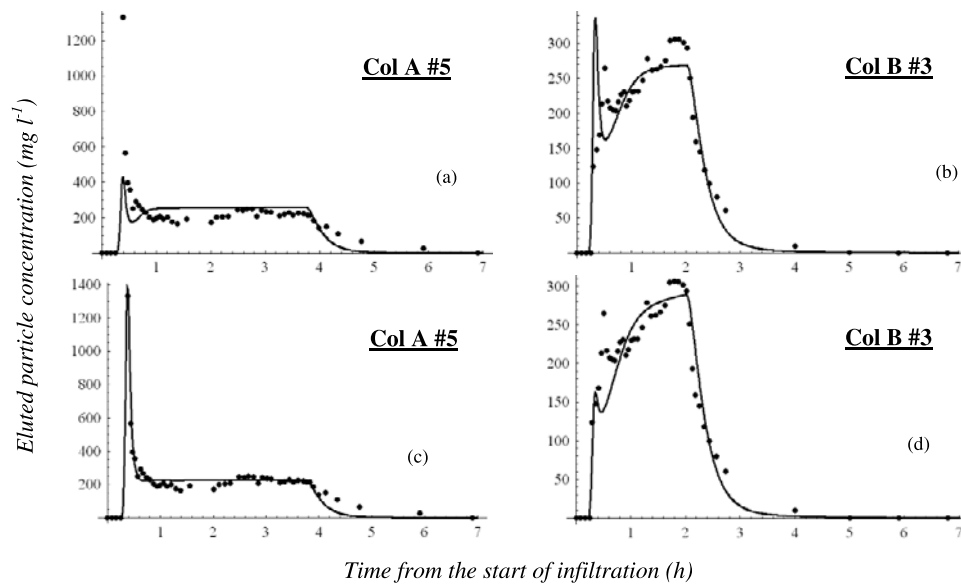


Figure 9. Validation of the model. (a) Result of the prediction for Col A5 using particle transport parameters calibrated from Col B2. (b) Result of the prediction for Col B3 using particle transport parameters calibrated from Col B2. (c) Result of the simulation for Col A5 using k_{att} and k_{det} parameters calibrated on Col B2 and k_{acc} , α , and β parameters calibrated from Col A5. (d) Result of the simulation of Col B3 using k_{att} and k_{det} parameters calibrated from Col B2 and k_{acc} , α , and β parameters calibrated from Col B3. Circles show experimental data; line shows the simulation.

parameters (k_{acc} , k_{det} , k_{att} , α , and β) calibrated on Col B2. These columns have the same experimental conditions: square pulse water flow about 11 mm h^{-1} and incoming solution ionic strength approximately $1.5 \cdot 10^{-3} \text{ M}$. While stages II and III of the breakthrough curves are satisfactory predicted, the concentration peak is underestimated in Col A5 and overestimated in Col B3. This suggests that k_{acc} parameter is sensitive to macropore network differences between one soil column and another, as well as macropore network changes between one infiltration event and another on the same soil column.

[48] Although Col A5 and Col B3 have the same experimental conditions as Col B2, they do not have the same history. The columns have undergone a different number of rainfall events. Therefore, if we consider that k_{att} and k_{det} are closely related to experimental conditions (such as nature of the soil, incoming solution ionic strength, rainfall intensity) while k_{acc} , α and β depend more on macropore network structure and column history, we can run a simulation of Col A5 and Col B3 using the k_{att} and k_{det} parameters calibrated on Col B2 and k_{acc} , α and β parameters calibrated on Col A5 (Figure 9c) and Col B3 (Figure 9d). The predictions are satisfactory. This raises the problems of the quantification of macroporosity in soils, and its changes with soil history.

7. Conclusions

[49] In this study, we modeled mobilization and transport of particles in natural macroporous soils under unsaturated conditions. We used the kinematic dispersive wave approach to model macropore water flow and introduced a time-dependent source term to describe variability of particle release from macropore crust. The KDW model described well the behavior of water flux, showing thus

the capacity of the kinematic dispersive waves to describe preferential water flow in structured natural soils. The particle transport model gave very satisfactory simulations of eluted particle concentrations with only two more parameters than contained in models based on a first-order kinetics. The validation of the model was tested on two predictive simulations. It showed that the initial concentration peak can hardly be simulated without a calibration of the k_{acc} parameter. The ability of the model to predict particle transport requires the relation of all its parameters to experimental conditions or to soil properties. A step has been done in this direction by relating the ratio R to the ionic strength of the incoming solution FI . To assert this relation, further infiltration experiments must be carried out with incoming solution ionic strength around the FI_c threshold. Additionally, quantification of the soil macroporosity and its variations in time would help predicting particle mobilization and transport through a better estimation of macroporosity dependant parameters.

[50] **Acknowledgments.** We wish to thank Yves Dudal from INRA-Avignon and Jean-Paul Gaudet and Jean-François Daïan from LTHE Grenoble for many helpful suggestions and comments. This work was partially supported by the ECCO-PNRH ("Programme National de Recherches en Hydrologie," French Hydrological Research Program) on the project "Particules."

References

- Bresler, E., and G. Dagan (1983), Unsaturated flow in spatially variable fields: 2. Application of water flow models to various fields, *Water Resour. Res.*, 19, 421–428.
- Bresler, E., and A. Laufer (1974), Anion exclusion and coupling effects in nonsteady transport through unsaturated soils. II. Laboratory and numerical experiments, *Soil Sci. Soc. Am. Proc.*, 38, 213–218.
- Camesano, T. A., K. M. Unice, and B. E. Logan (1999), Blocking and ripening of colloids in porous media and their implications for bacterial transport, *Colloids Surf. A*, 160, 291–308.

- Di Pietro, L., S. Ruy, and Y. Capowicz (2003), Predicting water flow in soils by traveling-dispersive waves, *J. Hydrol.*, 278(1–4), 64–75.
- Ginn, T. R. (2000a), On the distribution of multicomponent mixtures over generalized exposure time in subsurface flow and reactive transport: Theory and formulations for residence-time-dependent sorption/desorption with memory, *Water Resour. Res.*, 36(10), 2885–2893.
- Ginn, T. R. (2000b), On the distribution of multicomponent mixtures over generalized exposure time in subsurface flow and reactive transport: Batch and column applications involving residence-time distributions and non-Markovian reaction kinetics, *Water Resour. Res.*, 36(10), 2895–2903.
- Ginn, T. R., B. D. Wood, K. E. Nelson, T. D. Scheibe, E. M. Murphy, and T. P. Clement (2002), Processes in microbial transport in the natural subsurface, *Adv. Water Resour.*, 25, 1017–1042.
- Goldberg, D. E. (1989), *Genetic Algorithms in Search, Optimization, and Machine Learning*, Addison-Wesley, Boston, Mass.
- Govindaraju, R. S., L. N. Reddi, and S. K. Kasavaraju (1995), A physically based model for mobilization of kaolinite particles under hydraulic gradients, *J. Hydrol.*, 172, 331–350.
- Grolimund, D., K. Barmettler, and M. Borkovec (2001), Release and transport of colloidal particles in natural porous media: 2. Experimental results and effects of ligands, *Water Resour. Res.*, 37(3), 571–582.
- Haggerty, R., and S. M. Gorelick (1995), Multiple-rate transfer for modeling diffusion and surface reactions in media with pore-scale heterogeneity, *Water Resour. Res.*, 31(10), 2383–2400.
- Haggerty, R., and S. M. Gorelick (1998), Modeling mass transfer processes in soil columns with pore-scale heterogeneity, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 62, 62–74.
- Holland, J. H. (1975), *Adaptation in Natural and Artificial Systems*, Univ. of Mich. Press, Ann Arbor.
- Jacobsen, O. H., P. Moldrup, C. Larsen, L. Konnerup, and L. W. Petersen (1997), Particle transport in macropores of undisturbed soil columns, *J. Hydrol.*, 196, 185–203.
- Jarvis, N. J., K. G. Villholth, and B. Ulen (1999), Modelling particle mobilization and leaching in macroporous soil, *Eur. J. Soil Sci.*, 50, 621–632.
- Johnson, W. P., K. A. Blue, B. E. Logan, and R. G. Arnold (1995), Modeling bacterial detachment during transport through porous media as a residence-time-dependent process, *Water Resour. Res.*, 31(11), 2649–2658.
- Jury, A. W., W. R. Gardner, and W. H. Gardner (1991), *Soil Physics*, 5th ed. John Wiley, Hoboken, N. J.
- Khilar, K. C., and H. C. Fogler (1984), The existence of a critical salt concentration for particle release, *J. Colloid Interface Sci.*, 101(1), 214–224.
- Kjaergaard, C., P. Moldrup, L. W. de Jonge, and O. H. Jacobsen (2004), Colloid mobilization and transport in undisturbed soil columns. II. The role of colloid dispersibility and preferential flow, *Vadose Zone J.*, 3, 424–433.
- Kretzschmar, R., K. Barmettler, D. Grolimund, Y. Yan, M. Borkovec, and H. Sticher (1997), Experimental determination of colloid deposition rates and collision efficiencies in natural porous media, *Water Resour. Res.*, 33(5), 1129–1137.
- Laegdsmand, M., K. G. Villholth, M. Ullum, and K. H. Jensen (1999), Processes of colloid mobilization and transport in macroporous soil monoliths, *Geoderma*, 93, 33–59.
- Levin, J. M., J. S. Herman, G. M. Hornberger, and J. E. Saiers (2006), Colloid mobilization from a variably saturated intact soil core, *Vadose Zone J.*, 5, 564–569.
- McCarthy, J. F., and J. M. Zachara (1989), Subsurface transport of contaminants, *Environ. Sci. Technol.*, 23(5), 496–502.
- McKay, L. D., W. E. Sanford, and J. M. Strong (2000), Field-scale migration of colloidal tracers in a fractured shale saprolite, *Ground Water*, 38(1), 139–147.
- Nielsen, D. R., and J. W. Biggar (1962), Miscible displacement. III. Theoretical considerations, *Soil Sci. Soc. Am. Proc.*, 26, 216–221.
- Nielsen, D. R., M. T. van Genuchten, and J. W. Biggar (1986), Water flow and solute transport processes in the unsaturated zone, *Water Resour. Res.*, 22, 89S–108S.
- Rousseau, M. (2003), Particle transport in an unsaturated soil: From experiments in an undisturbed column to the built of a physically-based model, Ph.D. thesis, 242 pp., Inst. Natl. Polytech. de Grenoble, Grenoble, France.
- Rousseau, M., S. Ruy, L. Di Pietro, and R. Angulo-Jaramillo (2004a), Unsaturated hydraulic conductivity of structured soils from a kinematic wave approach, *J. Hydraul. Res.*, 42, 83–91.
- Rousseau, M., L. Di Pietro, R. Angulo-Jaramillo, D. Tessier, and B. Cabibel (2004b), Preferential transport of soil colloidal particles: Physicochemical effects on particle mobilization, *Vadose Zone J.*, 3, 247–261.
- Roy, S. B., and D. A. Dzombak (1996), Colloid release and transport processes in natural and model porous media, *Colloids Surf. A*, 107, 245–262.
- Ryan, J. N., and M. Elimelech (1996), Colloid mobilization and transport in groundwater, *Colloids Surf. A*, 107, 1–56.
- Saiers, J. E., and J. L. Lenhart (2003), Colloid mobilization and transport within unsaturated porous media under transient-flow conditions, *Water Resour. Res.*, 39(1), 1019, doi:10.1029/2002WR001370.
- Schelde, K., P. Moldrup, O. H. Jacobsen, H. de Jonge, L. W. de Jonge, and T. Komatsu (2002), Diffusion-limited mobilization and transport of natural colloids in macroporous soil, *Vadose Zone J.*, 1, 125–136.
- Sposito, G., W. A. Jury, and V. K. Gupta (1986), Fundamental problems in the stochastic convection-dispersion model of solute transport in aquifers and field soils, *Water Resour. Res.*, 22, 77–88.
- Weiss, M., Y. Lüthi, J. Ricka, T. Jörg, and H. Bebie (1998), Colloidal particles at solid-liquid interfaces: Mechanism of desorption kinetics, *J. Colloid Interface Sci.*, 206, 322–331.
- Zhuang, J., Y. Jin, and M. Flury (2004), Comparison of colloids and kaolinite transport in porous media, *Vadose Zone J.*, 3, 395–402.

R. Angulo-Jaramillo, S. Majdalani, and M. Rousseau, LTHE, B.P. 53, F-38041 Grenoble Cedex 9, France. (samer.majdalani@hmg.inpg.fr)

L. Di Pietro and E. Michel, Unité Climat, Sol et Environnement, Institut National de la Recherche Agronomique, Domaine St. Paul, F-84914 Avignon Cedex 9, France.

TROISIEME PARTIE

Evolution temporelle du « pool » de
particules mobilisables pendant la période de
pause

Chapitre 1 : Préambule

Dans la deuxième partie nous avons approché par une modélisation numérique l'évolution temporelle du stock de particules pendant un événement pluvieux. Notamment, nous considérons qu'un stock initial de particules disponible au début d'un événement pluvieux était représenté par l'état final du stock de particules à la fin de l'événement pluvieux précédent.

Ainsi, le stock de particules était supposé invariable entre deux événements. Dans cette partie, nous allons étudier la possibilité d'une variation du stock de particules mobilisables entre deux événements. Ainsi, l'état final du stock à la fin d'un événement pluvieux est susceptible d'évoluer pendant la période de pause qui précède l'événement pluvieux suivant.

Une partie du travail de cette partie a été soumis à *European Journal of Soil Science* (Majdalani et al., 2007c).

1.1. Le stock de particules

La mobilisation continue de particules, même après de nombreux événements pluvieux, a poussé certains auteurs à postuler l'existence d'une source illimitée de particules (El-Farhan et al., 2000; Schelde et al., 2002). Par contre, la diminution de la masse de particules mobilisées suite à plusieurs événements pluvieux a poussé d'autres auteurs à postuler l'existence d'un « pool » de particules mobilisables de taille finie, ayant tout de même la possibilité de se régénérer entre deux événements successifs (Kaplan et al., 1993). Bien qu'aucune étude systématique n'ait été menée pour quantifier la régénération, cette dernière a été attribuée aux cycles gel/dégel (Worrall et al., 1999) et imbibition/séchage (Kaplan et al., 1993).

En effet, la quasi-totalité des études sur la mobilisation et le transport des particules se concentrent uniquement sur l'événement pluvieux lui-même sans tenir compte de ce qui se passe entre deux événements. Par conséquent, les phénomènes étudiés sont restreints à la durée de l'infiltration et ne prennent pas en considération l'effet de mémoire, à savoir : la dépendance de la mobilisation de particules sur la chronologie des périodes humides et sèches précédentes. Cette chronologie comprend le nombre, la durée et l'intensité des dernières infiltrations subies par la colonne, ainsi que le nombre et la durée des pauses (interruption de pluie) entre ces événements.

Jusqu'à cette date, la seule étude qui a tenté d'étudier l'effet de pause est celle de Schelde et al. (2002) dans laquelle des colonnes de sol non remaniées ont été exposées à des périodes de

séchage variables entre les irrigations (30 minutes, 1 jour et 7 jours). Dans ces expériences, la concentration de particules lessivées en fonction du temps (particulogramme) suit l'allure générale déjà reportée dans plusieurs études (Zhuang et al., 2007; Ryan et al., 1998; Jacobsen et al., 1997; Schelde et al., 2002; El-Farhan et al., 2000; Kjaergaard et al., 2004; de Jonge et al., 2004) : une concentration élevée dans les premiers instants de drainage (pic initial) suivie d'une décroissance continue vers un niveau bas et constant (la queue) jusqu'à la fin du drainage.

Le résultat principal de Schelde et al. (2002) est qu'après une interruption de pluie, le pic initial augmente avec l'augmentation de la durée de pause précédente. Schelde et al. (2002) ont exclu deux mécanismes possibles pour la mobilisation de particules : cisaillement hydrodynamique de l'écoulement d'eau et l'adsorption à l'interface eau-air. Ils ont modélisé leurs résultats expérimentaux en supposant une double diffusion de particules pendant l'événement pluvieux et pendant la pause. Cependant, le travail de Schelde et al. (2002) ne permet pas de tirer des conclusions vis-à-vis de l'effet de la pause sur la mobilisation de particules pour les deux raisons suivantes :

- L'étendue de pauses testées est très limitée : seulement trois durées ont été testées avec la plus longue correspondant à 7 jours. Ceci ne permet pas de faire des extrapolations et de voir le comportement de la mobilisation pour des durées beaucoup plus longues.
- En plus, les trois durées de pause n'ont pas été testées sur une même colonne mais plutôt sur trois groupes de colonnes différentes. Il est bien connu que la comparaison entre des colonnes de sol différentes doit être traitée avec beaucoup de précautions car aucune colonne de sol n'est identique à une autre.

Récemment, Zhuang et al. (2007) ont étudié l'effet du protocole d'infiltration sur la mobilisation des particules en comparant deux situations : (i) injection d'un volume d'eau donné en continu et (ii) injection du même volume d'eau mais avec plusieurs interruptions de pluie pendant l'irrigation. Ils ont confirmé qu'un même volume d'eau peut mobiliser plus de particules quand des interruptions de pluie sont faites pendant l'irrigation. La majorité des particules mobilisées apparaît alors dans les pics de concentration qui accompagnent les phases transitoires à chaque reprise de l'irrigation.

1.2. Comment quantifier l'évolution temporelle d'un stock de particules mobilisables ?

Pour répondre à cette question, il nous faut un critère unique de quantification du stock de particules, ainsi qu'un paramètre unique pour décrire son évolution.

Etant donné que notre intérêt porte sur l'évolution temporelle, le paramètre qui nous intéresse est évidemment le temps, et en particulier, la durée de la période qui sépare un événement pluvieux d'un autre (i.e. la pause). La durée de la pause sera donc le seul paramètre variable de l'étude. Tous les autres paramètres, notamment l'intensité de pluie et la force ionique de la solution infiltrante, seront maintenus constants pour une colonne de sol donnée.

La quantité de particules mobilisables (ou son renouvellement potentiel) est une information difficile à acquérir par mesure directe. En effet, la colonne de sol est considérée comme une boîte noire. Nous allons donc estimer cette information de manière indirecte à travers la quantité de particules lessivées en bas de la colonne suite à un événement pluvieux : on suppose qu'il existe une relation entre la quantité de particules présentes au sein de la colonne et la quantité de particules récupérées dans les effluents d'un événement pluvieux.

Ainsi, pour chaque durée de pause, la masse totale (ou cumulée) de particules lessivées pendant l'événement pluvieux reflétera l'évolution de la mobilisation de particules, et donne une image en conséquence de l'évolution temporelle du stock de particules.

Deux points supplémentaires doivent être pris en compte pour établir la comparaison des quantités de particules lessivées :

- Les événements pluvieux auxquels la colonne est soumise doivent être identiques : une même quantité d'eau sera appliquée sur la base d'un créneau d'intensité et de durée constantes,
- La quantité de particules lessivées est une fonction croissante de la quantité d'eau drainée pendant l'événement pluvieux, qui à son tour est une fonction décroissante de la durée de la pause. Il faut donc adopter une même base de comparaison en considérant une quantité d'eau drainée qui soit commune à tous les événements.

Chapitre 2 : Matériels, méthodes et protocole expérimental

Dans cette partie, nous détaillons le matériel utilisé pendant les expériences, les méthodes d'analyse du sol et des effluents, et le protocole expérimental. Dans cette thèse, nous avons mené des expériences d'infiltration sur des colonnes de sol non remaniées (15 cm diamètre, 25 cm hauteur) prélevées sur le site de l'INRA d'Avignon (sol sable-argileux) afin d'étudier l'évolution temporelle du stock de particules pendant la période d'interruption de pluie. Ceci a été fait en étudiant l'effet de la durée de pause séparant deux événements pluvieux sur la mobilisation ultérieure de particules. Nous donnerons donc des informations détaillées concernant le sol d'Avignon, l'analyse des effluents, et le dispositif expérimental. Ajoutons qu'une colonne non remaniée (15 cm diamètre, 25 cm hauteur) appartenant au sol de Versailles a aussi subi l'essai de pause après avoir été conservée cinq ans et demi au frigo.

2.1. Les colonnes de sol d'Avignon

Cinq colonnes (E, F, G, H, et M : 15 cm diamètre, 25 cm hauteur) ont été prélevées en Mai 2006 sur le site de l'INRA d'Avignon. Le sol est calcaire sableux argileux (Calcisol) originaire de la région de Collias mais déposé depuis plus de dix ans sur le site de l'INRA d'Avignon. Le profil à l'endroit d'extraction peut être considéré comme appartenant à un même horizon. Le Tableau III.2.1 montre les propriétés physico-chimiques du sol d'Avignon.

L'activité biologique est marquée par la présence de racines végétales ainsi que de vers de terre de taille moyenne qui de temps à autre apparaissent à la surface du sol. Une telle activité suggère la présence d'écoulements préférentiels. Le sol d'Avignon est beaucoup plus carbonaté et sa conductivité hydraulique est plus importante d'un ordre de grandeur que le sol de Versailles (colonne L) décrite ci-dessous.

| | |
|-------------------------------------|----------------------|
| K_s ($m s^{-1}$) | 1.8×10^{-3} |
| Organic C ($g Kg^{-1}$) | 3.69 |
| pH | 8.47 |
| CaCO ₃ ($g Kg^{-1}$) | 279 |
| CEC ($cmol. Kg^{-1}$) | 9 |
| Exchangeable Ca ($cmol. Kg^{-1}$) | 9.97 |
| Exchangeable Mg ($cmol. Kg^{-1}$) | 0.31 |
| Exchangeable K ($cmol. Kg^{-1}$) | 0.35 |
| Exchangeable Na ($cmol. Kg^{-1}$) | 0.036 |
| Fe libre (%) | 0.66 |

Tableau III.2.1 : Propriétés physiques et chimiques du sol d'Avignon.

2.1.1. Protocole de prélèvement

Les colonnes ont été extraites du terrain par "carottage". Le protocole de prélèvement utilisé s'est déroulé en 3 étapes:

- Enfouissement vertical de la colonne en PVC biseautée à sa base
- Excavation du sol se situant autour de la colonne
- Soulèvement de la colonne

De plus, des échantillons de sol (en vrac) ont été prélevés autour des colonnes à l'endroit de prélèvement, en vue de leur caractérisation chimique, granulométrique, et pour l'établissement de la courbe d'étalonnage liant la concentration à l'absorbance spectrophotométrique. Les colonnes ainsi que les échantillons de sol ont été conservés dans des frigos à une température voisine de 5°C.

2.1.2. Granulométrie

La distribution granulométrique a été déterminée par granulométrie laser. Le granulomètre utilisé est un Mastersizer 2000 avec l'accessoire Hydro 2000SM (A) (Malvern instruments, UK) ; sa gamme de mesure s'étend de 20 nm à 2 mm. La granulométrie laser utilise le principe de diffraction et de diffusion d'un faisceau laser, et notamment la théorie de Mie. La source lumineuse du granulomètre est composée d'un laser hélium-néon et d'une diode laser dont la longueur d'onde est 685 nm. Nous sommes donc bien dans le cas d'application de la théorie de Mie et non de Fraunhofer (la condition de Mie/Fraunhofer sur la longueur d'onde est qu'elle doit être plus petite que le diamètre des grains). Nous avons utilisé l'eau comme dispersant (indice de réfraction: 1.33 à 20°C). L'indice de réfraction et le coefficient d'absorption des particules naturelles ont été estimés par le fabricant à 1.51 et 0.001 respectivement.

La distribution granulométrique du sol a été caractérisée à partir des échantillons prélevés autour des colonnes à l'endroit de prélèvement. L'analyse est réalisée dans le grand mélangeur (mélangeur principal) du granulomètre en utilisant des ultrasons pour désagréger les agglomérats de particules. Quant à la distribution granulométrique des particules présentes dans les effluents, l'analyse est réalisée dans le petit mélangeur du granulomètre spécialement conçu pour des quantités très faibles de particules. Il faut noter que même en utilisant le petit mélangeur, les concentrations de particules dans les effluents étaient tellement faibles que l'appareil fonctionnait à la limite de détection : la quantité analysée était toujours en dessous de la quantité minimale requise par l'appareil. Pour cette raison, il faut regarder avec

beaucoup de précautions les distributions de tailles relatives aux particules présentes dans les effluents.

Les résultats de l'analyse granulométrique des sols peuvent être vus sous deux angles : (i) le **nombre** de particules (%) appartenant à un certain intervalle de taille ou (ii) le **volume** de particules (%) appartenant à un certain intervalle de taille. Les distributions de tailles résultant de ces deux types d'informations sont évidemment assez différentes, vu qu'une grosse particule peut faire basculer la distribution volumique de taille vers la droite (vers les gros diamètres) (Figure III.2.1).

Remarque :

L'analyse granulométrique des effluents de divers événements pluvieux (Figure III.2.2) n'a pas montré une tendance particulière de la taille, que ça soit pendant l'événement pluvieux ou d'un événement à un autre. On peut juste constater que la limite supérieure de taille de particules lessivées est généralement aux alentours de 100 μm . Cette remarque ne renseigne pas sur l'évolution du stock de particules et ne sera donc plus considérée par la suite dans l'analyse des résultats.

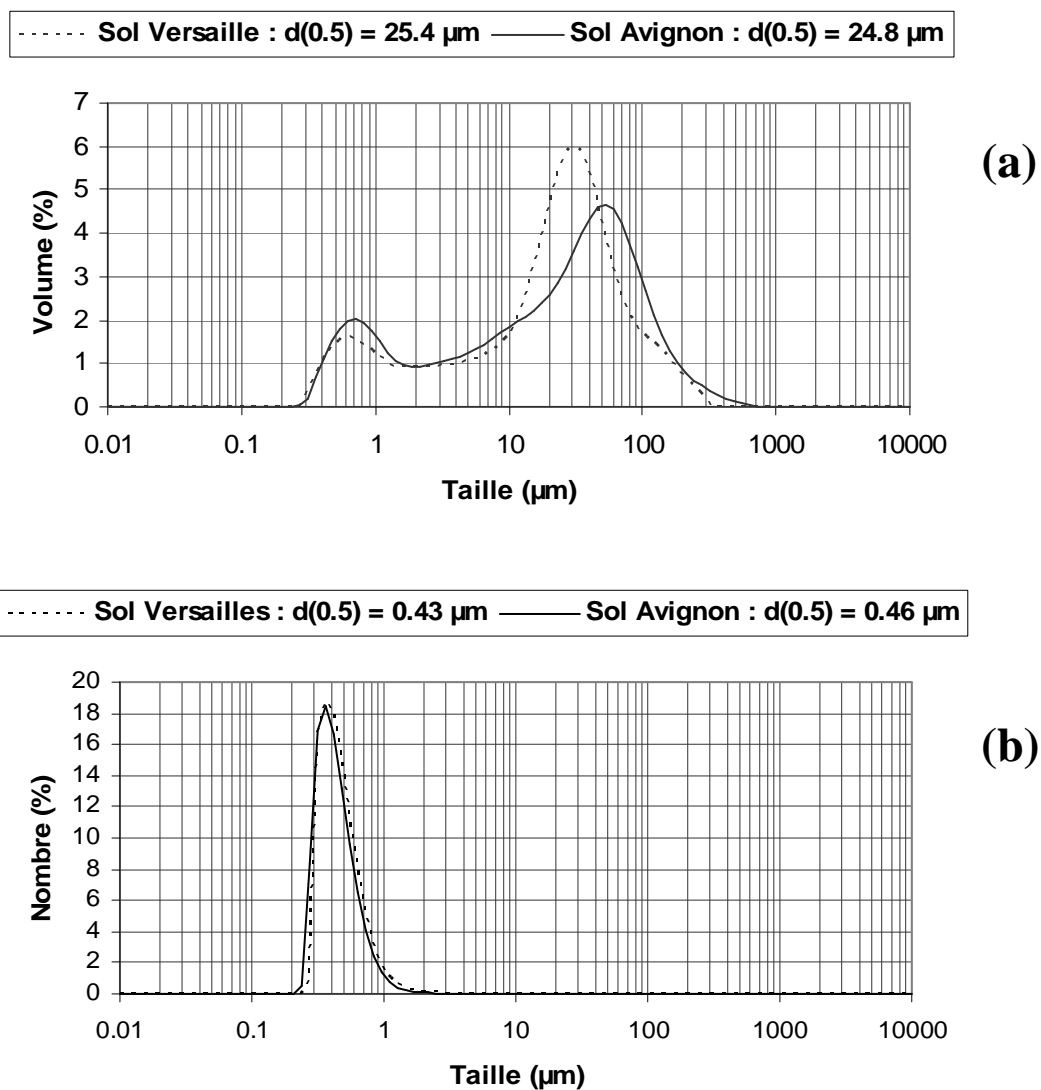


Figure III.2.1 : Distribution granulométrique pour le sol de Versailles (pointillé) et d'Avignon (continu) : (a) Pourcentage de volume, (b) Pourcentage de nombre.

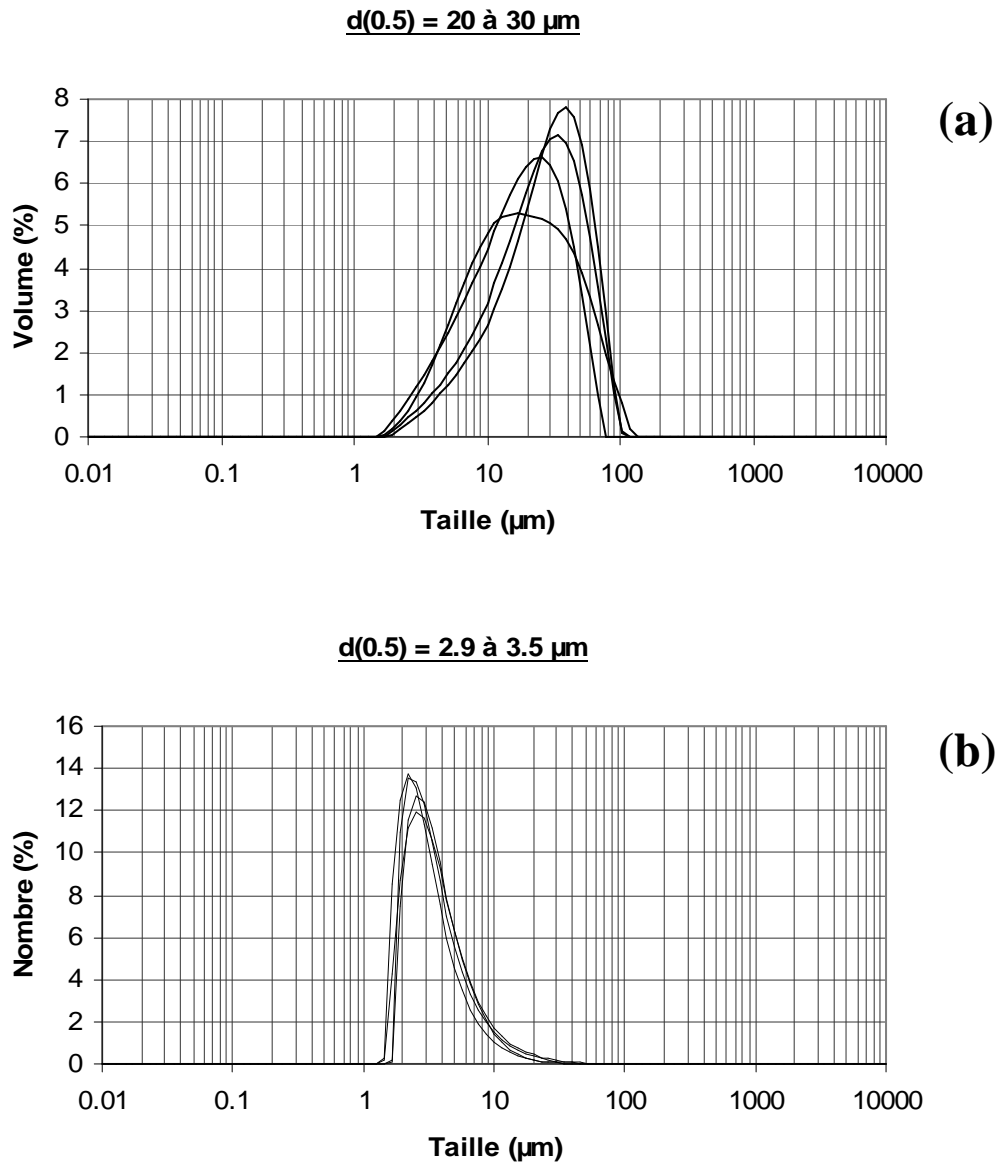


Figure III.2.2 : Distribution granulométrique des effluents appartenant à plusieurs événements pluvieux effectués sur les colonnes de sol d'Avignon : (a) Pourcentage de volume, (b) Pourcentage de nombre.

2.2. Prélèvement de la colonne L (sol de Versailles)

Les colonnes A et B objet de l'étude de la deuxième partie ont été prélevées en Février 2001 sur le site de l'INRA de Versailles. Lors de leur prélèvement, d'autres colonnes lysimétriques de même taille (25 cm diamètre, 70 cm hauteur) ont été aussi prélevées et stockées au frigo de l'INRA d'Avignon à une température de 5°C. Afin de tester sur le sol de Versailles l'effet de pause de pluie sur la mobilisation des particules, une colonne L (15 cm diamètre, 25 cm hauteur) a été carottée en Août 2007 à l'intérieur d'un lysimètre (25 cm diamètre, 70 cm

hauteur). Ce prélèvement s'est fait au niveau de l'horizon H3 (34-65 cm) (Tableau II.1). Le cylindre de prélèvement L a été poussé petit à petit manuellement à travers le lysimètre après avoir enlevé au fur et à mesure avec un couteau tout le sol qui entoure la circonférence extérieure du cylindre enfoncé (Figure III.2.3). De plus, des échantillons de sol (en vrac) ont été prélevés tout autour de la colonne L, en vue de caractériser la courbe d'étalonnage liant la concentration en particules à l'absorbance spectrophotométrique.



Figure III.2.3 : Le prélèvement de la colonne L (15 cm diamètre, 25 cm hauteur) à partir d'un lysimètre (25 cm diamètre, 70 cm hauteur). La colonne L est enfoncée à fur et à mesure après avoir débarrassé du sol qui l'entoure.

2.3. Protocole expérimental

2.3.1. Spectrophotométrie

La mesure de la concentration des particules dans les effluents est exprimée en masse solide par unité de volume liquide (concentration massique). Etant donné que la masse des particules lessivées est très faible, la concentration massique ne peut être obtenue par simple pesée sur une balance. Ceci nous oblige à utiliser la méthode de spectrophotométrie afin de déduire la concentration de particules à partir de la mesure de la densité optique des effluents.

L'absorption de la lumière est mesurée avec un spectrophotomètre UV/VIS (551S, Perkin-Elmer), à 400 nm. Le principe de la spectrophotométrie repose sur la mesure du rapport entre l'intensité du rayonnement émis par l'appareil et celle du rayonnement après la traversée de la solution. Le spectrophotomètre donne la valeur de la densité optique (DO):

$$DO = \log_{10} \left(\frac{I_0}{I} \right) \quad (1)$$

où I_0 est l'intensité de la lumière incidente et I l'intensité de la lumière émergente.

La valeur obtenue pour la densité optique est ensuite corrélée à une concentration massique en particules de la solution grâce à une droite d'étalonnage préalablement établie. Pour ce faire, des mesures par spectrophotométrie ont été effectuées sur une solution d'étalonnage très concentrée et sur ses dilutions. La solution d'étalonnage est préparée en dissolvant des échantillons de sol (prélevés autour des colonnes à l'endroit de prélèvement) dans de l'eau et en les filtrant à 100 μ m. On obtient ainsi une solution « mère » très concentrée qui contient une quantité de particules suffisamment grande pour être détectée par une balance sensible dont l'erreur sur la pesée est faible par rapport à la masse de particules. A partir de la solution « mère », on réalise plusieurs solutions diluées : 10 x, 20 x, 50 x, 100 x, 200 x, 500 x, et 1000 x.

Le volume de la solution « mère » étant connu, on la fait sécher à l'étuve à 100°C pendant 24 heures. La pesée du résidu sec ainsi obtenu permet de connaître la concentration massique en particules de la solution « mère ». Les concentrations des solutions diluées sont ensuite déduites à partir de la concentration « mère » chacune suivant son degré de dilution. La mesure de la densité optique de la solution « mère » et de ses dilutions permet de dresser une corrélation linéaire entre la concentration et la densité optique. Afin de s'assurer de la validité des résultats, plusieurs solutions « mères » ont été préparées. La Figure III.2.4 montre les courbes d'étalonnages obtenues pour le sol de Versailles (coefficient de régression $r = 1007.4$) et d'Avignon (coefficient de régression $r = 2347$).

On constate que la dispersion des mesures est plus importante pour les solutions fortement concentrées en particules. Il est fort probable que la présence d'un grand nombre de particules fausse la mesure. Deux explications sont possibles: (i) si une particule se trouve dans la trajectoire du rayonnement réfléchi par une autre particule, l'intensité transmise sera plus faible, et la densité optique mesurée sera donc faussée et (ii) d'après la loi de Stokes, les grosses particules sédimentent plus vite, ce qui entraîne une forte variation de la densité optique à la fois au cours de la mesure pour un même aliquote et entre deux répétitions.

Afin d'éviter les problèmes de sédimentations de particules lors de la mesure de la densité optique, nous avons choisi de mettre en circulation la solution des effluents. Ceci a été fait en

reliant une cuve à circulation à une pompe péristaltique qui met en mouvement la solution à mesurer. Entre une mesure et une autre, nous faisons passer de l'eau pour bien nettoyer les parois de la cuve. Par ailleurs, les échantillons trop concentrés en matières en suspension ont été dilués avant d'être analysés au spectrophotomètre.

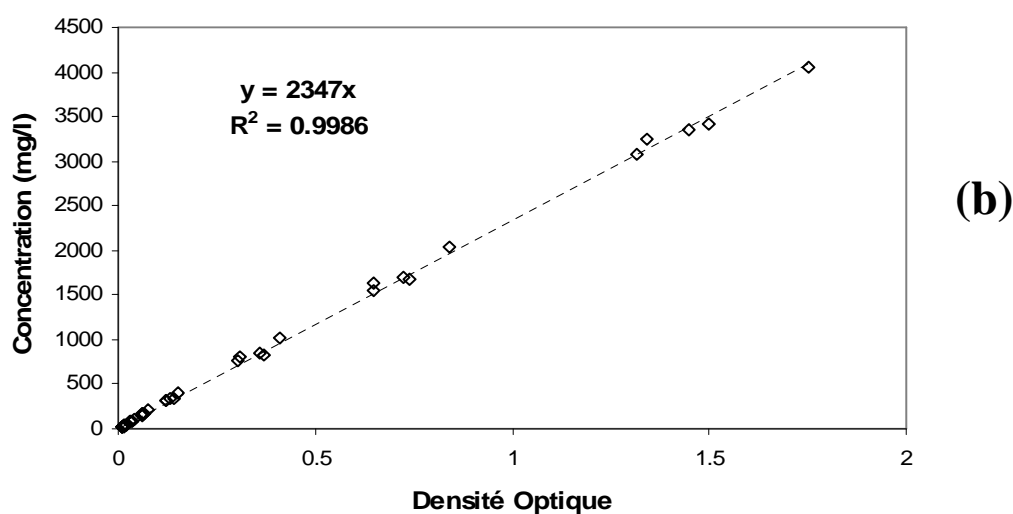
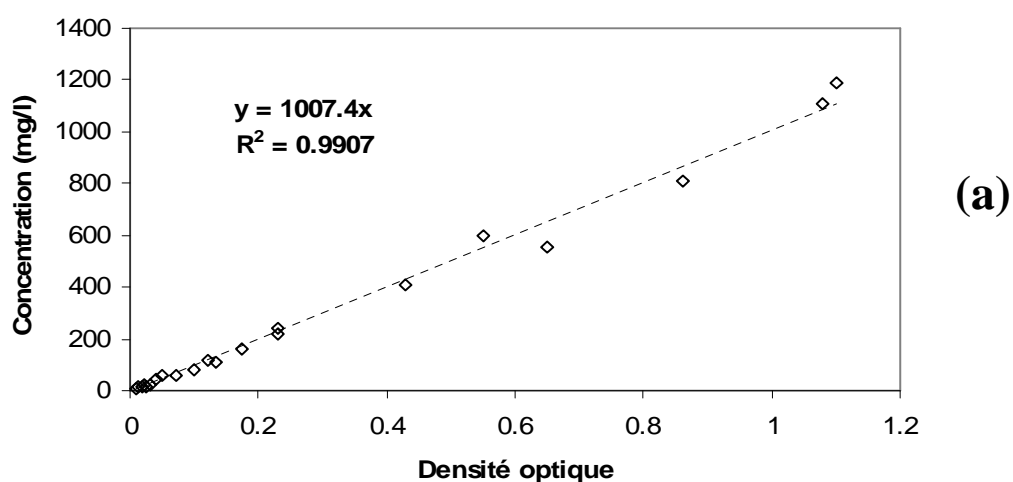


Figure III.2.4 : Courbes d'étalonnages du spectrophotomètre établies pour différentes solutions « mères » et leurs dilutions correspondantes : (a) Sol de Versailles, (b) Sol d'Avignon.

Trois types d'incertitudes ont été estimés sur le calcul de la masse de particules dans les effluents :

- Incertitude sur la *pesée* des effluents $\delta_{pesée}$ de l'ordre de 0.1 g (erreur de la balance). Cette pesée permet de déduire le volume de la solution en question. Ayant le volume et la concentration, nous obtenons la masse de particules lessivées
- Incertitude sur la densité optique δ_{DO} de l'ordre de 0.001 (erreur du spectrophotomètre)
- Incertitude liée à la régression linéaire δ_r de l'étalonnage. Elle est déduite de l'erreur type commise sur l'estimation du coefficient de la régression. Pour le sol de Versailles (respectivement le sol d'Avignon), cette erreur est de l'ordre de 21.154 (respectivement 11.125).

L'incertitude globale sur la masse de particules dans chaque flacon d'effluents est donc estimée comme suit:

$$\delta_{masse} = masse \left(\frac{\delta_{pesée}}{pesée} + \frac{\delta_{DO}}{DO} + \frac{\delta_r}{r} \right) \quad (2)$$

2.3.2. Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé pour réaliser des essais d'infiltration et de drainage sur les colonnes non remaniées est montré en Figure III.2.5. Un simulateur de pluie constitué de 57 aiguilles hypodermiques, de 0.5 mm de diamètre, distribuées dans un réseau de mailles carrées de 2 cm de coté, permet d'irriguer la surface de la colonne. Les aiguilles hypodermiques se situent à 10 cm environ de la surface du sol. Une pompe péristaltique permet de contrôler l'intensité et la durée de la pluie. La base de la colonne repose sur une plaque en Inox perforée (trous de 2 mm). Les eaux de drainage sont acheminées par un entonnoir jusqu'à un flacon qui repose sur la Balance 1.

La Balance 1 enregistre le poids des effluents toutes les dix secondes. Ces enregistrements permettent d'obtenir l'évolution temporelle du flux d'eau (mm/h) en bas de la colonne (« hydrogramme »). L'ensemble (colonne + Balance 1 + effluent) repose sur une grande Balance 2. La différence de poids entre Balance 1 et Balance 2 permet de suivre la teneur en eau moyenne dans la colonne en fonction du temps. L'échantillonnage des flacons contenant les effluents permet d'analyser la quantité des particules lessivées et leur évolution temporelle tout le long de l'événement pluvieux (« particulogramme »).

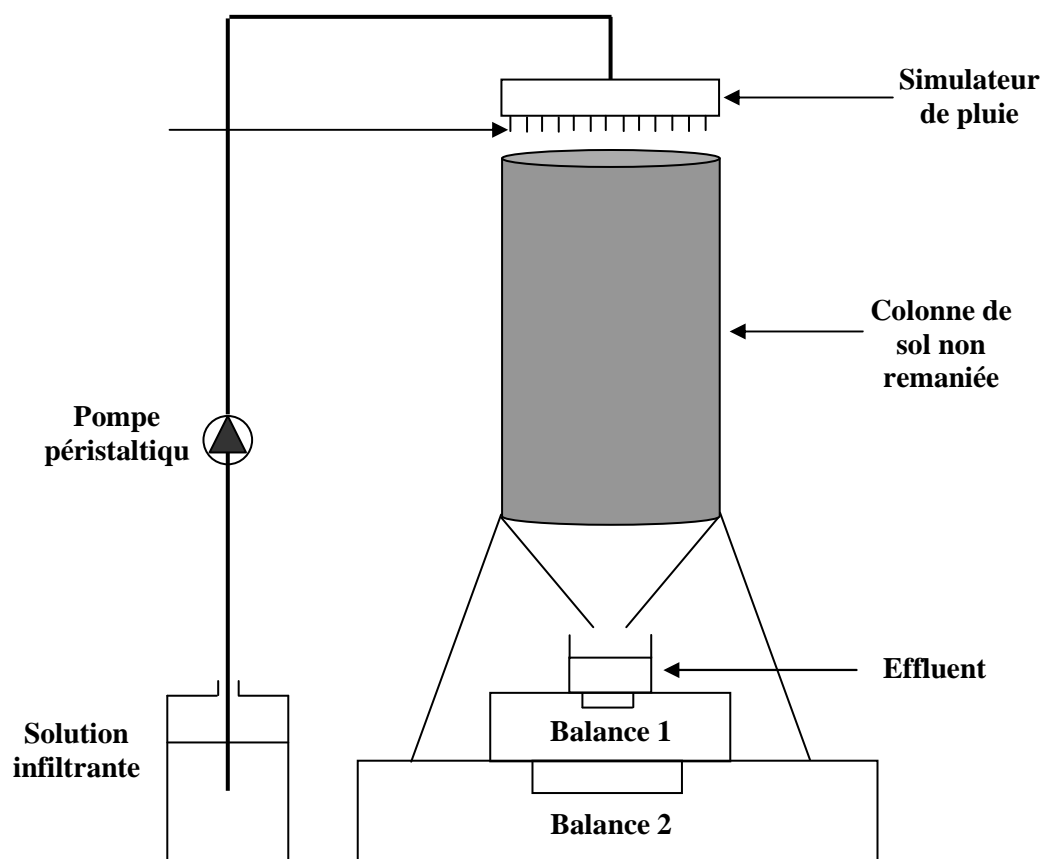


Figure III.2.5 : Dispositif expérimental permettant de simuler les événements pluvieux en laboratoire. Le dispositif permet d'obtenir l'hydrogramme et le particulogramme.

2.3.3. Conductivité hydraulique à saturation K_{sat}

La conductivité hydraulique à saturation K_{sat} a été mesurée sur la colonne E à l'aide du perméamètre de Darcy. La mesure de K_{sat} a été faite avant d'entamer les essais de la durée de pause. La colonne est placée préalablement sur une table de succion pendant trois jours avec une charge hydraulique imposée de -6 cm par rapport à la base de la colonne. La table de succion permet par remontée capillaire de saturer la microporosité du sol. Ainsi l'ensemble de la porosité de la colonne sera complètement remplie d'eau pendant la mesure de K_{sat} .

La colonne est positionnée verticalement. L'eau est introduite lentement du bas vers le haut de la colonne pour ne pas perturber la structure et pour garantir une saturation complète. Il faut plus d'une heure avant que l'eau ne jaillisse à la surface de la colonne. Ensuite, plusieurs charges hydrauliques constantes sont imposées par le bas en partant des charges faibles jusqu'aux charges plus importantes. Les gradients de charge hydraulique varient entre 0.06 et 0.12 cm/cm (Figure III.2.6). Quand le régime permanent est atteint pour chacune de ces

charges, on fait plusieurs mesures du débit traversant la colonne et puis on passe à la charge suivante.

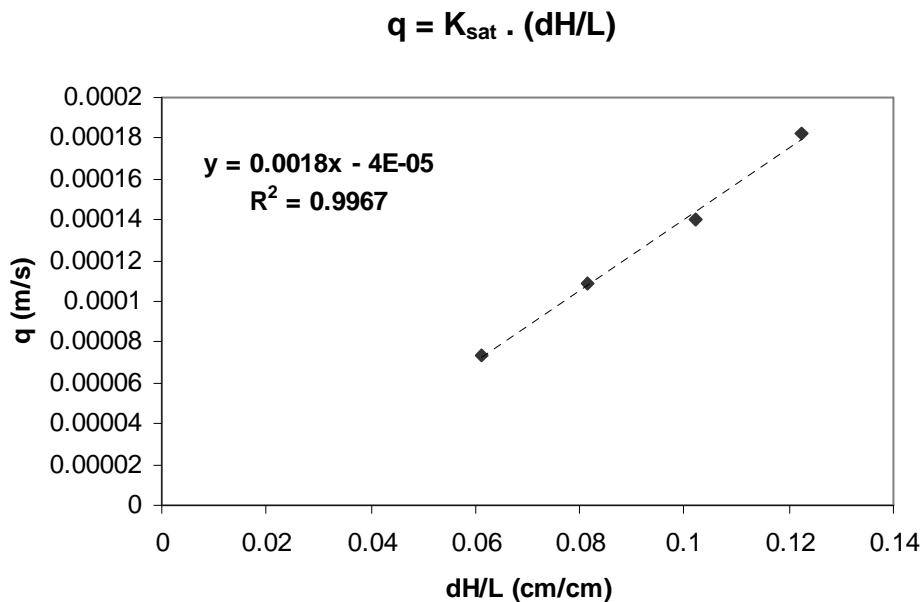


Figure III.2.6 : Le débit par unité de surface q (m/s) est obtenu pour plusieurs différences de charges dH entre l'entrée (le bas) et la sortie (le haut) de la colonne de hauteur L . La pente de la régression linéaire permet de déduire la conductivité hydraulique à saturation K_{sat} .

2.3.4. Protocole expérimental pour l'essai de pause

Le but des expériences d'infiltrations menées sur les colonnes de sol d'Avignon (E, F, G, H, et M) et sur la colonne de sol de Versailles (L) est l'étude de l'évolution temporelle des stocks de particules pendant l'interruption de la pluie. Ceci est fait à travers l'étude de l'effet de la durée de pause séparant deux événements pluvieux successifs (pause entre deux événements commençant à T1 et T2 (Figure III.2.7)).

Avant de commencer l'essai de pause, chaque colonne est équilibrée pendant trois jours sur la table de succion avec une charge hydraulique de -6 cm appliquée à la base de la colonne afin de saturer la microporosité. Ensuite, les colonnes sont « lavées » (avec la même solution qui sera utilisée sur la colonne) par cinq événements pluvieux (créneaux de 3 heures de durée et de 10 mm/h d'intensité de pluie) espacés de 48 heures dans le temps, afin d'enlever les particules détachées par les stress exercés sur la colonne lors du prélèvement. Seule la colonne E a subi une mesure de la conductivité hydraulique à saturation (paragraphe 2.3.3) entre

l'étape de la table de succion et celle du lavage. La solution infiltrante est constituée d'eau désionisée avec du $MgCl_2$ à **force ionique constante**.

Un essai de pause consiste à exposer d'abord une colonne de sol à un événement pluvieux (créneau de durée et d'intensité de pluie **I constantes**) au temps T_1 . La pause est comptée à partir de l'arrêt d'irrigation de l'événement précédent ($T_1 + \text{Durée créneau}$) et le début d'irrigation de l'événement suivant (T_2). Ainsi, la pause comprend toute la période de drainage qui suit l'arrêt de pluie et sa durée est $\Delta T = T_2 - (T_1 + \text{Durée créneau})$. Le drainage est évidemment gravitaire au départ (drainage rapide suite à la vidange des gros pores) et se poursuit avec un rythme plus ou moins régulier mais moins intense qu'au départ (perte de l'eau plutôt par évaporation que par gravité). La surface de la colonne est couverte pendant la période de pause. Le drainage à la base de la colonne est libre, aucune succion n'est appliquée en sortie. Les colonnes sont stockées dans le laboratoire à la température ambiante de la chambre ($\sim 22^\circ C$). Durant ces expériences la pause est le **seul** paramètre variable, les autres conditions expérimentales (intensité de pluie, force ionique de la solution infiltrante) sont maintenues constantes. Le but est de déterminer la quantité (masse) de particules lessivées par événement pluvieux et ceci pour **différentes durées de pause** (Figure III.2.7).

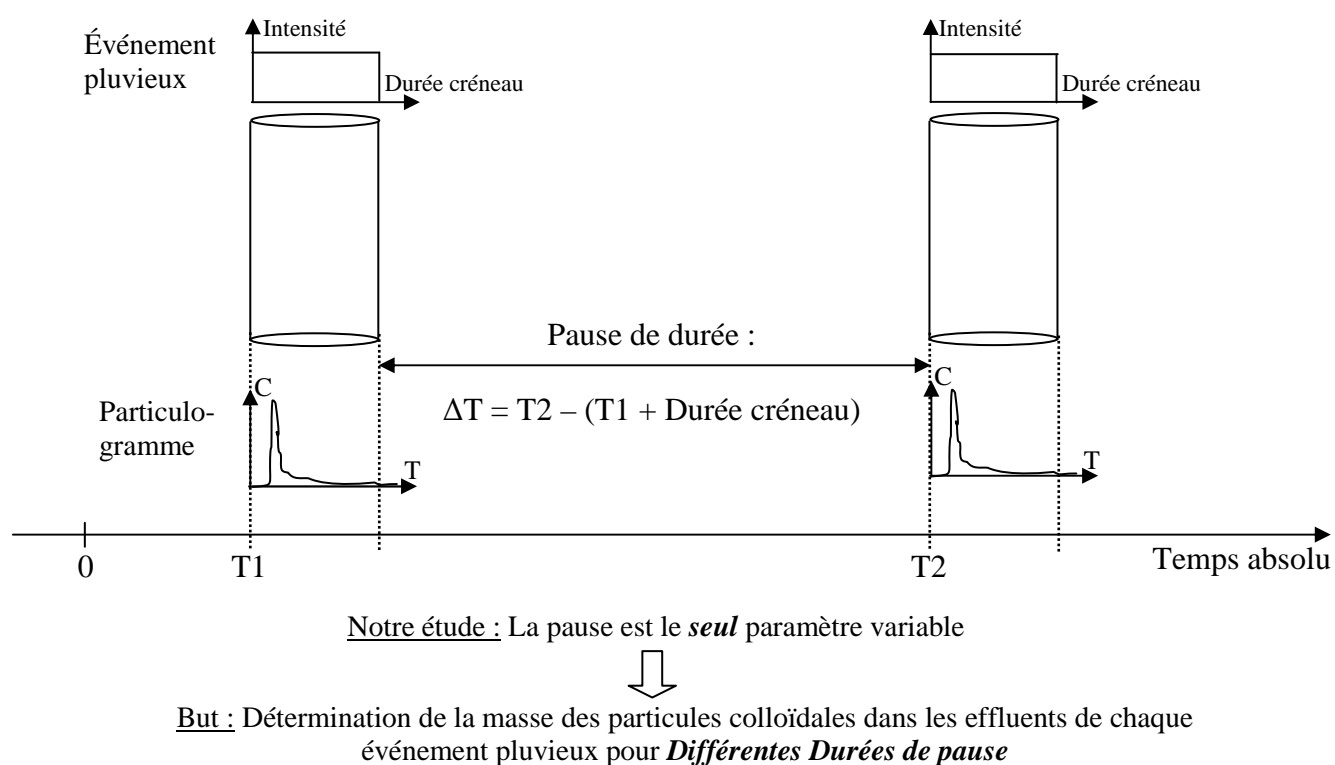


Figure III.2.7 : Essai de pause.

Chapitre 3 : Résultats expérimentaux

Les résultats expérimentaux sont présentés en s'appuyant essentiellement sur l'analyse de la courbe cumulée de particules lessivées. Seront analysés : l'ordre des pauses (croissantes, régulières, et irrégulières), la force ionique de la solution infiltrante, l'intensité de la pluie imposée, le lessivage intensif de la colonne, et la nature du sol.

3.1. Formes typiques d'un hydrogramme, d'un particulogramme et d'une « Courbe cumulée » de particules

Au cours d'un événement pluvieux, les enregistrements continus (toutes les 10 secondes) du poids des effluents en sortie de la colonne permettent d'obtenir le flux d'eau (mm/h) en bas de la colonne en fonction du temps (h) i.e. l'hydrogramme. Tous les hydrogrammes obtenus pour le sol d'Avignon ont la même forme typique en trois phases (Figure III.3.1a) : (i) une première phase (transitoire) correspondant à l'établissement de l'écoulement et qui se traduit par une augmentation rapide du flux, (ii) une deuxième phase qui correspond au régime d'écoulement permanent, et (iii) une troisième phase (transitoire) correspondant à l'arrêt de l'irrigation et qui se traduit par une diminution rapide du flux jusqu'à la fin de drainage.

Les particulogrammes présentent (Figure III.3.1a) un pic initial élevé suivi d'une décroissance de la concentration vers un niveau bas et constant. Rappelons que ce comportement a été typiquement observé dans des études portant sur la mobilisation de particules dans des colonnes de sol non remaniées (Jacobsen et al., 1997; Schelde et al., 2002; El-Farhan et al., 2000; Kjaergaard et al., 2004; Zhuang et al., 2007), comme dans certains cas des expériences de Rousseau (2003). Notons que pour des pauses de plus en plus longues, le temps de percée de l'eau augmente conduisant à un décalage vers la droite de l'hydrogramme et du particulogramme.

La « courbe cumulée » est définie comme étant la masse cumulée de particules lessivées en fonction de la lame d'eau cumulée en sortie de la colonne. Elle est facilement déduite à partir du particulogramme en multipliant pour chaque flacon la concentration de particules mesurée par le volume d'eau correspondant et en faisant la somme sur l'ensemble des flacons. La courbe cumulée est évidemment toujours croissante. Dans la plupart des cas, la courbe cumulée possède elle aussi une forme typique : une augmentation rapide de la masse de particules mobilisées sur les quelques premiers flacons suivie d'une augmentation beaucoup plus faible jusqu'à la fin du drainage (Figure III.3.1b).

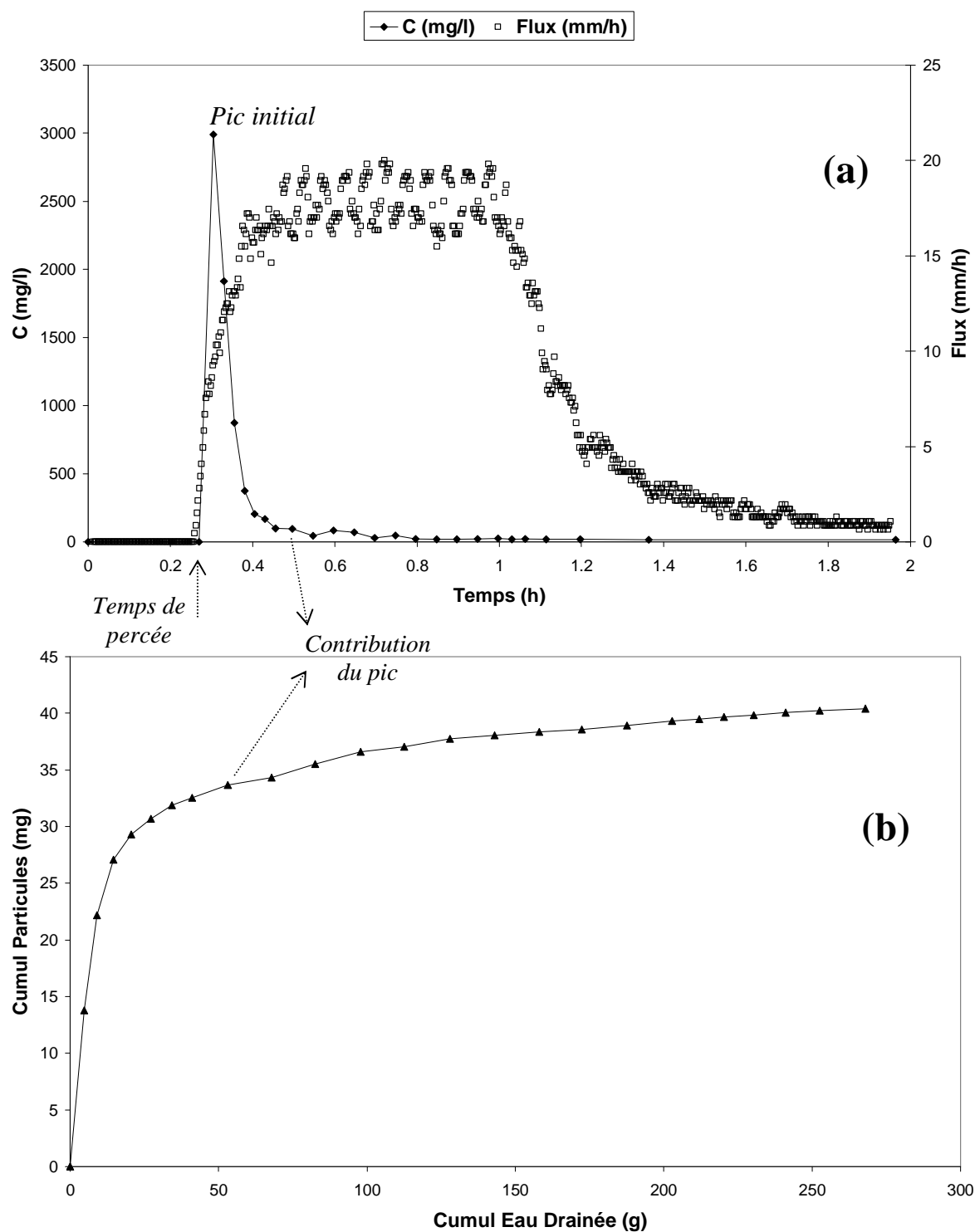


Figure III.3.1 : (a) Forme typique d'un hydrogramme et d'un particulogramme avec le pic initial et le temps de percée associés. C'est la réponse en bas de la colonne suite à un créneau de pluie de durée 1 h et d'intensité ~ 20 mm/h appliqué à la surface de la colonne (b) Forme typique d'une « courbe cumulée ». La contribution du pic est majoritaire par rapport à l'ensemble des particules mobilisées.

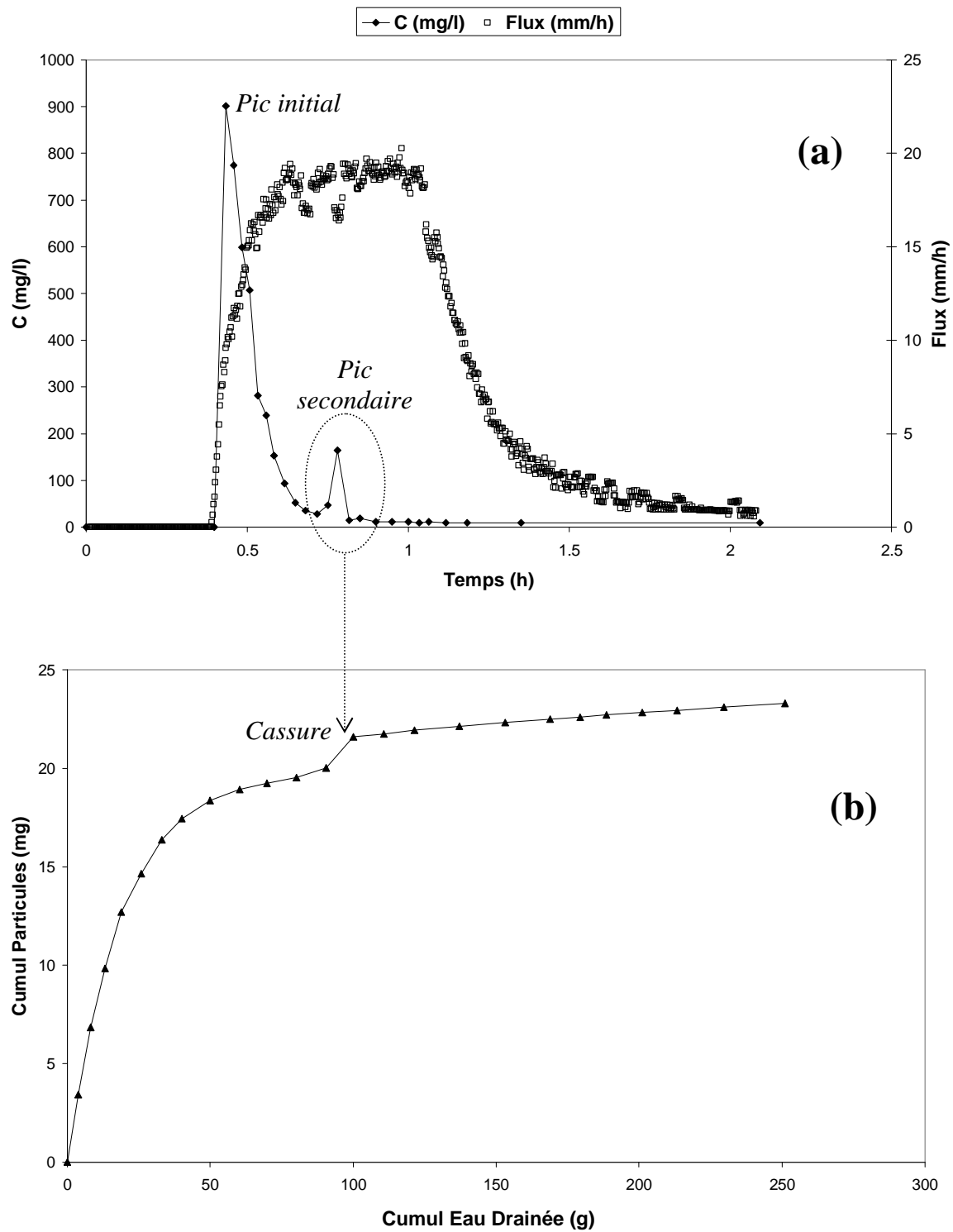


Figure III.3.2 : Impact d'un pic secondaire de concentration sur la « courbe cumulée ». Une légère cassure (ou rupture de pente) traduit l'augmentation subite de masse suite à un pic secondaire accidentel.

L'augmentation rapide de la masse cumulée de particules au départ reflète la contribution importante du pic du particulogramme à la masse totale mobilisée. Cette augmentation rapide est suivie par une faible augmentation de la masse cumulée due à la faible contribution de la queue du particulogramme. Généralement, les quelques flacons du départ (très concentrés) contiennent la majorité des particules lessivées. Dans l'exemple de la Figure III.3.1, nous constatons que les premiers 50 g d'eau cumulée (à peu près 20 % de la quantité totale d'eau cumulée) contiennent presque 33 mg de particules lessivées (plus que 85 % de l'ensemble des particules mobilisées !).

Certains particulogrammes (peu nombreux) présentaient, pendant l'infiltration, un pic secondaire beaucoup plus petit que le pic initial (Figure III.3.2a). Ce pic secondaire peut être dû à des pores initialement bloqués et qui se débloquent soudainement conduisant à un largage instantané d'une quantité importante de particules (Jacobsen et al., 1997). Vu que le nombre observé de tels comportements est faible par rapport à l'ensemble des particulogrammes mesurés, et vu la nature aléatoire du pic secondaire, ces événements seront considérés comme accidentels. L'augmentation subite de masse de particules suite à un pic secondaire accidentel se traduit par une légère cassure (ou rupture de pente) de la courbe cumulée (Figure III.3.2b).

Le pic du particulogramme est corrélé avec la première phase transitoire de l'hydrogramme. Il reflète l'arrivée du front d'imbibition en bas de la colonne : la fin du pic correspond à l'établissement du régime permanent de l'écoulement (Figure III.3.1a). Si la majorité de particules est mobilisée pendant la phase transitoire de l'écoulement, ceci implique que l'avancement du front d'imbibition joue un rôle principal dans la mobilisation et le transport des particules. Par conséquent, les forces principales qui accompagnent le front d'imbibition (accélération du flux et adsorption à l'interface eau-air) doivent être prises en considération dans la discussion des mécanismes de mobilisation et de transport des particules.

Pour distinguer quantitativement la contribution du pic de celle de la queue à l'ensemble des particules mobilisées, nous ajustons les courbes cumulées par l'expression mathématique suivante :

$$MCP(MCE) = \left(1 - \exp \left[- \frac{MCE}{MCE_c} \right] \right) (p MCE + i) \quad (1)$$

Où MCP (mg) est la Masse Cumulée de Particules mobilisées, MCE (g) est la Masse Cumulée d'Eau drainée, MCE_c (g) est la Masse Cumulée d'Eau Critique qui assure la transition du comportement exponentiel (contribution pic) au comportement linéaire (contribution queue). La pente, p (mg/g), et l'ordonnée à l'origine i (mg), de la partie linéaire décrivent

respectivement la contribution de la queue et du pic à la masse totale de particules lessivées (Figure III.3.3).

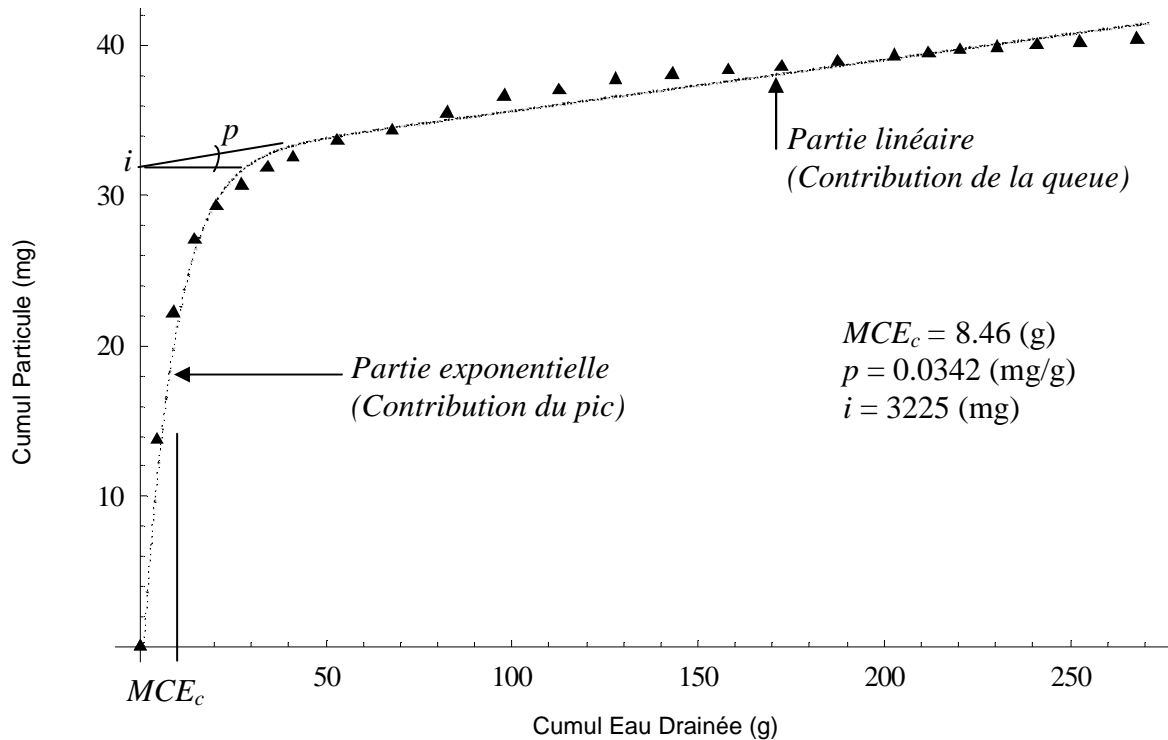


Figure III.3.3 : Simulation de la courbe cumulée en supposant une mobilisation à deux vitesses : une augmentation exponentielle au départ suivie d'une augmentation linéaire plus faible. Triangles pleins : données brutes de la courbe cumulée. Pointillé : courbe simulée selon l'expression mathématique (1)

L'expression (1) n'est dérivée d'aucune considération théorique. Elle permet seulement d'avoir un même critère de traitement des courbes cumulées au lieu de séparer subjectivement les contributions du pic et de la queue.

Les courbes cumulées serviront de base pour quantifier la mobilisation de particules. Leur principal avantage sur le particulogramme réside dans le fait qu'elles permettent de comparer les différentes quantités de particules mobilisées correspondant à plusieurs événements pluvieux, et ceci sur la base commune d'une même lame d'eau drainée (i.e., une même abscisse pour comparer des ordonnées différentes).

3.2. Résultats de l'effet de pause sur la mobilisation de particules

Dans cette section, nous présentons les essais sur les colonnes H, G, E, F, M du sol d'Avignon, et L du sol de Versailles, en soulignant les raisons des choix expérimentaux, à savoir : soit un changement de condition expérimentale entre une colonne et une autre, soit dans la façon d'imposer les pauses. Les résultats principaux seront exposés ci-dessous et les autres seront reportés dans l'Annexe 2.

3.2.1. Evolution du cumul de particules en fonction de la pause (Colonne H)

L'idée intuitive d'un essai de pause est celle d'une succession de pauses ayant des durées différentes en ordre croissant. Ainsi sur la colonne H, 12 infiltrations ont été effectuées avec 12 pauses allant de 1 h jusqu'à 1683.3 h (Figure III.3.4). Les conditions expérimentales sont constantes tout le long de l'essai :

- Force ionique de la solution infiltrante $FI = 10^{-5}M$,
- Intensité de pluie $I = 20 \text{ mm/h}$,
- Créneau de pluie de durée 1 h.

Les hydrogrammes correspondant aux différentes durées de pauses testées sur la colonne H ont une forme commune (Figure III.3.5). Les trois phases d'un hydrogramme peuvent être bien distinguées sur l'ensemble des courbes : une montée rapide associée à la première phase transitoire d'établissement de l'écoulement, suivie d'un plateau associé au régime permanent, et puis une descente rapide associée à la deuxième phase transitoire après l'arrêt d'irrigation jusqu'à la fin du drainage.

Le temps de percée t_p , indiquant l'arrivée du front d'infiltration en bas de la colonne, augmente avec la durée de pause ce qui conduit à un décalage vers la droite des hydrogrammes pour des pauses de plus en plus croissantes.

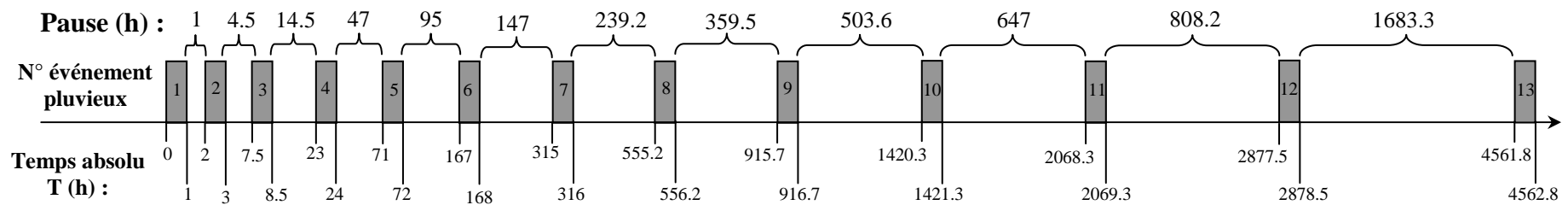


Figure III.3.4 : Historique des événements pluvieux et des pauses testées sur la colonne H. Le temps absolu marque la durée totale des essais sur la colonne. Chaque rectangle gris représente un créneau de pluie de durée 1 heure, d'intensité 20 mm/h et de force ionique 10^{-5} M. Le numéro contenu dans chaque rectangle gris représente l'ordre de l'événement pluvieux, le premier ayant commencé au temps absolu zéro. La série de pauses testées sur la colonne H comprend des pauses allant de 1 h à 1683.3 h. La durée totale de cette expérience à la fin de l'événement 13 est de 4562.8 h (plus de 190 jours).

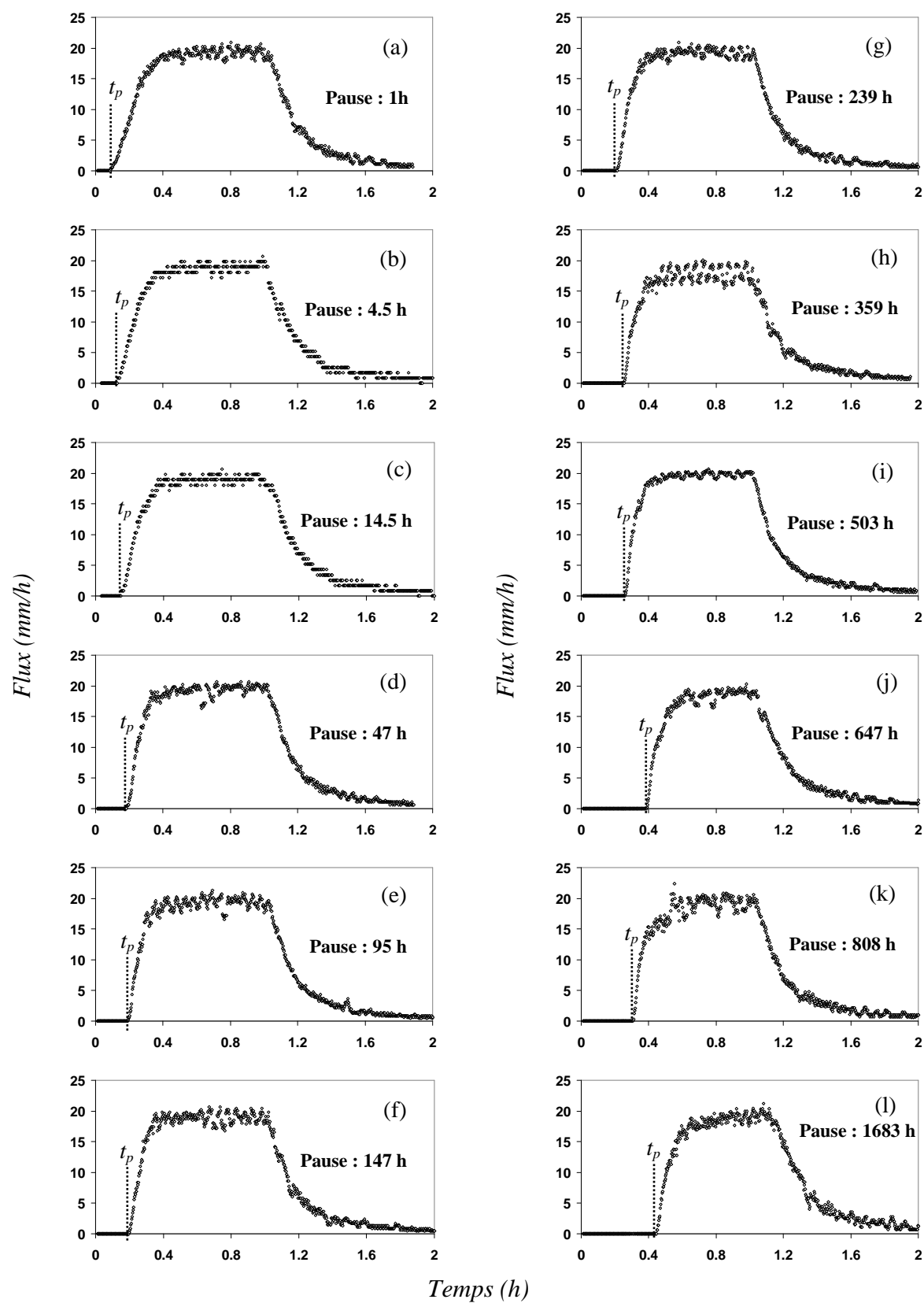


Figure III.3.5 : Ensemble des hydrogrammes de la colonne H pour des pauses allant de 1 h à 1683 h. Le temps de percée t_p est compté à partir du début de l'irrigation et il correspond à la sortie de la première goutte d'eau (arrivée du front d'imbibition) en bas de la colonne.

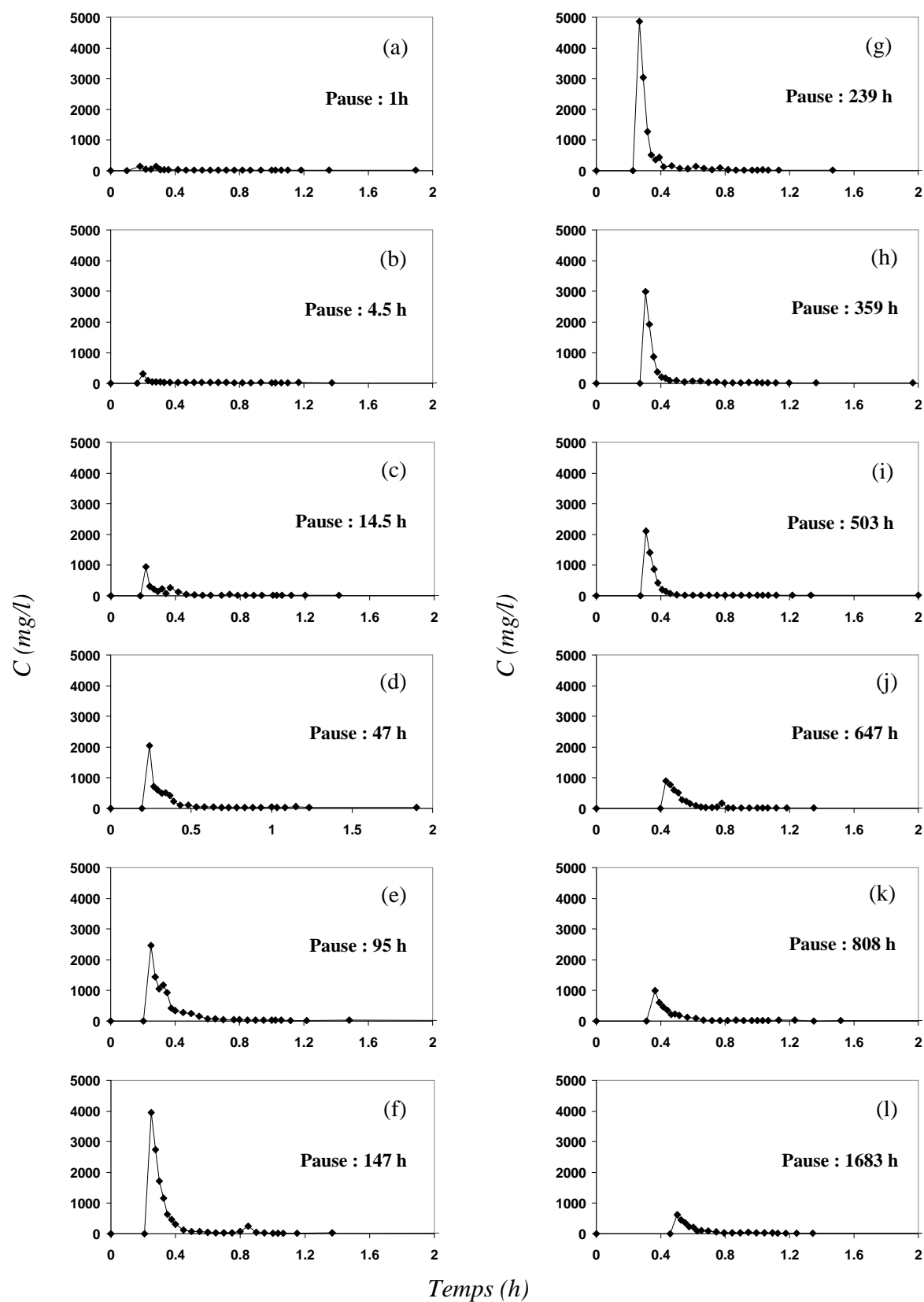


Figure III.3.6 : Ensemble des particulogrammes de la colonne H pour des pauses allant de 1 h à 1683 h.

Les particulogrammes correspondant aux différentes durées de pauses testées sur la colonne H ont une forme commune : un pic initial élevé suivi d'une décroissance de la concentration vers un niveau bas et constant (Figure III.3.6). Dans certains cas, des pics secondaires peuvent être distingués (Figure III.3.6f). Ce genre de pics est de nature accidentelle (des pores bloqués qui s'ouvrent subitement) plutôt que le résultat d'un comportement particulier de mobilisation. Le nombre de pics secondaires est faible par rapport à l'ensemble des événements (un cas sur douze pour la colonne H) et ils ne changent pas le comportement global de mobilisation. Comme les hydrogrammes, les particulogrammes sont décalés vers la droite au fur et à mesure que la pause augmente, reflétant également l'augmentation continue du temps de percée avec la pause.

Il est frappant d'observer sur l'ensemble des particulogrammes (Figure III.3.6) comment l'amplitude du pic varie avec la durée de pause. L'amplitude du pic est faible pour des pauses de courtes durées. Elle augmente avec la durée de pause jusqu'à un maximum aux alentours de 239 heures (Figure III.3.6 a à g). Ensuite, elle diminue pour des durées de pause de plus en plus importantes (Figure III.3.6 h à l). Ce même effet est visible sur les courbes cumulées de la Figure III.3.7. Il se manifeste par des différences de niveaux entre les courbes indiquant principalement l'augmentation de la masse de particules mobilisées en début d'événement pluvieux. Pour une même quantité d'eau en sortie de la colonne (même cumul d'eau), la quantité totale de particules lessivées par événement pluvieux (cumul particules) augmente en allant d'une pause de 1 h à 147 h (Figure III.3.7a). Ensuite, cette tendance est inversée en allant de la pause de 147 h à 1683.3 h (Figure III.3.7b).

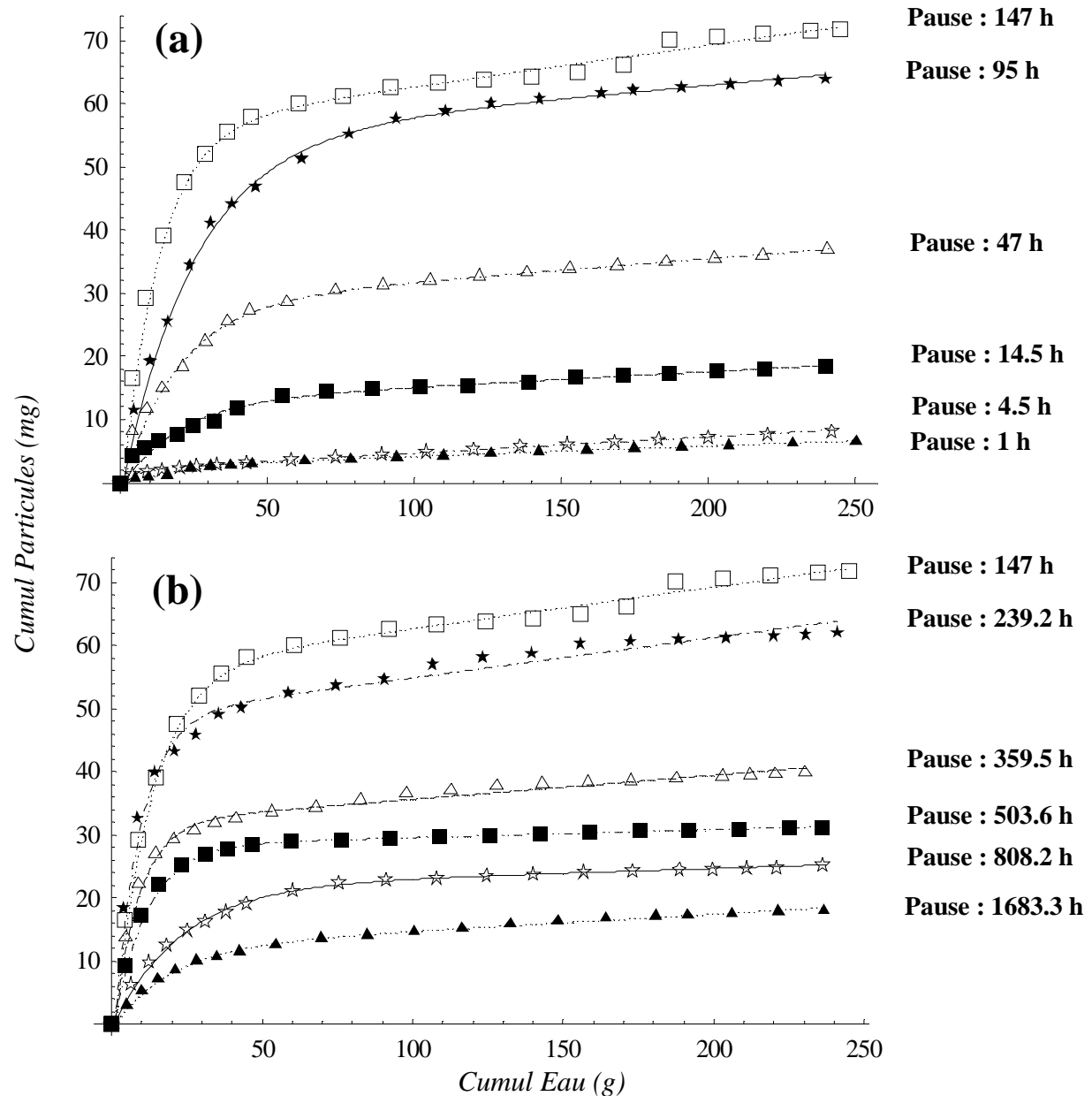


Figure III.3.7 : Ensemble des courbes cumulées pour différentes durées de pause testées sur la colonne H. (a) Durées de pause allant de 1 h à 147 h. (b) Durées de pauses allant de 147 h à 1683.3 h. Les lignes pointillées sont les courbes simulées selon l'expression (1). L'erreur sur la masse cumulée de particules a été estimée en prenant en considération l'erreur de mesure sur la balance, l'erreur de mesure avec le spectrophotomètre, et l'erreur sur la régression linéaire d'étalonnage de celui-ci. La somme de toutes ces erreurs à la fin de l'événement pluvieux était inférieure à 1 mg.

L'ensemble des particulogrammes (Figure III.3.6) suggère que le maximum de mobilisation se produit apparemment pour une pause de 239 h : ceci n'est qu'une appréciation visuelle qui ne prend pas en compte l'épaisseur (largeur) du pic ainsi que la masse de particules correspondant à chaque concentration. Or la masse de particules est calculée comme le produit de la concentration par le volume liquide. Dans certains cas, une faible concentration dans un grand volume peut donner une masse supérieure à celle d'une grande concentration dans un petit volume. Pour la colonne H, le maximum de mobilisation se produit pour une pause de 147 h (Figure III.3.7) plutôt que 239 h.

Un meilleur aperçu de l'évolution de la quantité totale de particules lessivées par événement pluvieux en fonction de la durée de pause, peut être déduit à partir de l'ensemble des courbes cumulées : il s'agit de calculer le cumul de particules correspondant à un même cumul d'eau (~ 240 g d'eau sortant de la colonne) et ceci pour chaque durée de pause. Les résultats (Figure III.3.8a) montrent un comportement de mobilisation assez particulier :

La quantité de particules mobilisées par événement pluvieux augmente avec la durée de pause jusqu'à atteindre un maximum aux alentours de 147 h, puis elle diminue pour des durées de pauses de plus en plus importantes.

L'évolution du temps de percée en fonction de la durée de pause (Figure III.3.8b) peut être grossièrement divisée en deux parties : (i) une augmentation rapide (forte pente) jusqu'à des pauses de l'ordre de 48 h et (ii) une augmentation plus lente (faible pente) pour des pauses plus longues ayant des durées supérieures à 48 h. Sous une intensité de pluie constante (20 mm/h dans le cas de la colonne H), le temps de percée reflète l'état de remplissage de la porosité de la colonne. En effet, le front d'imbibition va être retardé à l'intérieur de la colonne lorsque la porosité est plus vide en début d'événement, ce qui arrive lorsque la pause augmente. Il existe donc une relation entre l'état de remplissage initial de la porosité et le temps de percée.

Durant les premières 48 h suivant l'arrêt de pluie, c'est la macroporosité, ainsi que les gros pores qui lui sont hydrauliquement connectés, qui se vide en premier : la perte d'eau est donc essentiellement due à un drainage gravitaire. La quantité d'eau perdue est donc relativement importante vu qu'il s'agit de gros pores. Au-delà de 48 h de pause, l'air pénètre de plus en plus dans la colonne et la perte d'eau se fait essentiellement par évaporation dans des pores de plus en plus petits. La quantité d'eau perdue alors est relativement plus faible vu qu'il s'agit de petits pores.

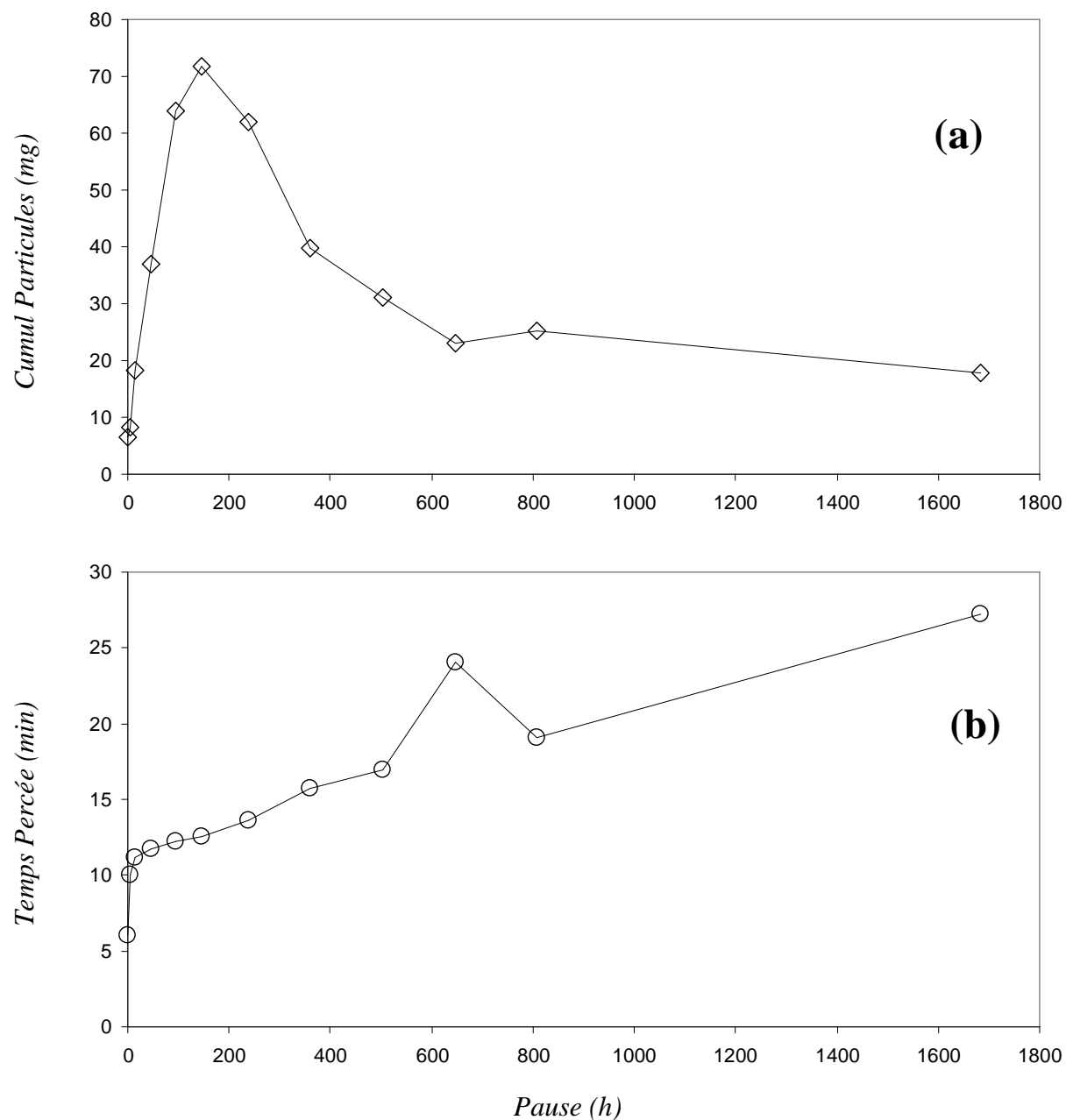


Figure III.3.8 : Colonne H. (a) Masse cumulée de particules lessivées par événement pluvieux en fonction de la durée de pause. Cette courbe est déduite de l'ensemble des courbes cumulées (Figure III.3.7) en prenant un même cumul d'eau en sortie de la colonne (~ 240 g) et en déduisant pour chaque pause le cumul de particules correspondant. (b) Temps de percée de chaque événement pluvieux pour les différentes pauses. Notons que l'intensité de pluie est la même (20 mm/h) pour toutes les événements.

Il semble que le maximum de mobilisation se produise dans une zone de transition après la fin du drainage gravitaire et le début de reprise de l'évaporation (Figure III.3.8). Ceci suggère que les mécanismes de mobilisation pendant la pause pourraient être liés à la dynamique de vidange de la porosité et à l'avancement progressif du front de séchage au sein de la colonne.

Dans le cas d'écoulement préférentiel, où l'eau circule préférentiellement par certains chemins au lieu de traverser toute la matrice du sol, le phénomène décrit ci-dessus reste valable à la différence près que c'est l'état de vidange de la porosité voisine des macropores (croûte du macropore) qui va principalement influencer le temps de percée. Par contre, l'état de saturation de la porosité lointaine aux macropores aura sensiblement moins d'influence sur le temps de percée car il s'agit d'une zone hydrodynamiquement moins active (i.e. qui n'est pas en connexion directe avec l'écoulement préférentiel). Pour mieux clarifier ce phénomène, nous allons comparer deux quantités :

- La masse d'eau perdue pendant la pause, calculée depuis le moment de l'arrêt de la pluie jusqu'à la reprise de l'irrigation au début de l'événement suivant, et,
- La masse d'eau équivalente au temps de percée, calculée en multipliant le temps de percée t_p par l'intensité de pluie I . Cette dernière quantité représente la masse d'eau absorbée avant la percée par la porosité active voisine du macropore.

La comparaison montre que la quantité d'eau perdue pendant la pause est toujours supérieure à celle absorbée par la colonne avant la percée (Figure III.3.9). Si les deux quantités sont égales (1^{ère} bissectrice du graphique), alors l'eau perdue pendant la pause proviendrait de la porosité voisine du macropore. Cette quantité serait compensée exactement pendant l'événement suivant. Notons que la 1^{ère} bissectrice est une limite qui ne peut pas être dépassée : la masse d'eau perdue pendant la pause est toujours supérieure à la masse d'eau équivalente du temps de percée. En effet, dès que la porosité voisine du macropore est remplie, l'eau perce. Autrement dit, la porosité voisine du macropore ne peut pas être remplie par une quantité d'eau plus importante que celle perdue pendant la pause afin de respecter le bilan de masse du drainage (effet hystérésis). Maintenant, si un point s'éloigne de la 1^{ère} bissectrice, cela indique que la perte d'eau s'est aussi produite ailleurs que dans les macropores et environs (plus probablement par évaporation). Cette perte d'eau loin des macropores ne peut pas être directement compensée par le front d'imbibition qui possède un rayon d'action hydrodynamique limité à la porosité voisine du macropore.

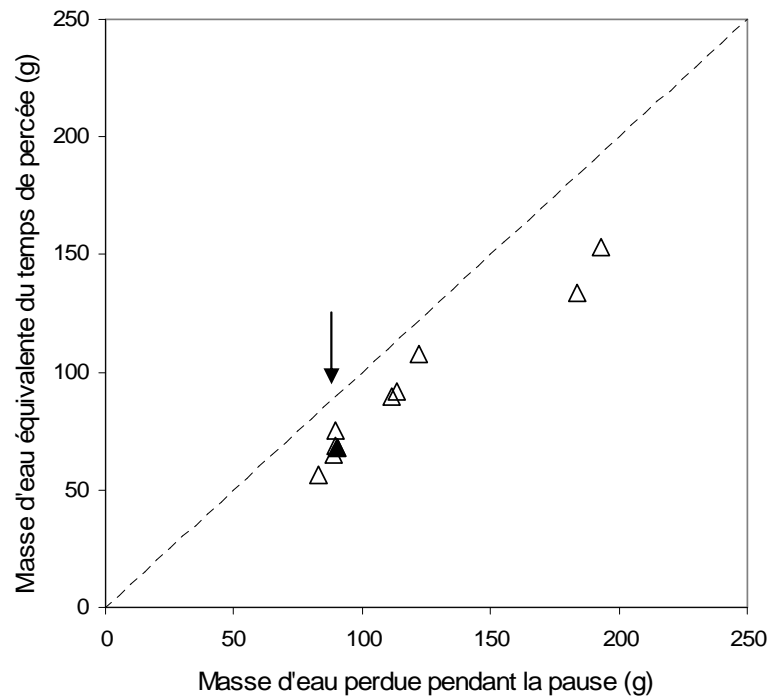


Figure III.3.9 : Comparaison entre la masse d'eau perdue pendant la pause (calculée du moment de l'arrêt de pluie lors d'un événement pluvieux jusqu'à la reprise de l'irrigation au début de l'événement suivant) et la masse d'eau équivalente du temps de percée (calculée en multipliant le temps de percée t_p par l'intensité de pluie I). L'éloignement de la 1^{ère} bissectrice indique que la perte d'eau pendant la pause se produit de plus en plus dans la matrice. La flèche et le signe plein indiquent la position du maximum.

Finalement, l'ajustement des courbes cumulées à l'aide de l'expression (1) permet d'obtenir l'évolution en fonction de la pause des trois paramètres i , p et MCE_c représentant respectivement la contribution du pic du particulogramme, la contribution de la queue du particulogramme et la quantité d'eau nécessaire pour passer du comportement exponentiel au comportement linéaire (Figure III.3.10). Les résultats montrent que l'ordonnée à l'origine i (Figure III.3.10a) suit le même comportement que la quantité totale de particules lessivées par événement pluvieux (Figure III.3.8a) avec un même maximum à 147 h.

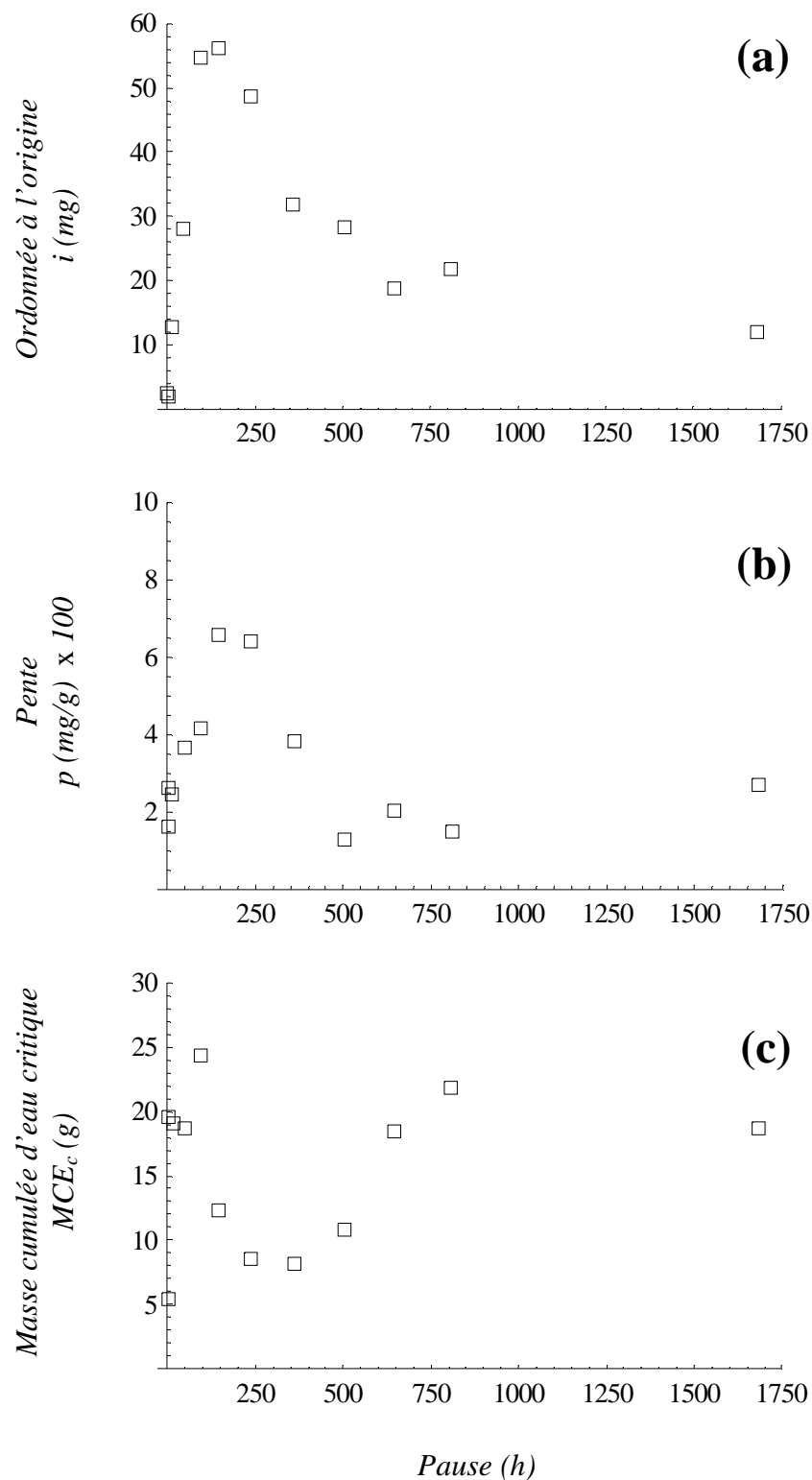


Figure III.3.10 : Paramètres correspondant à la simulation des courbes cumulées selon l'expression (1), et ceci pour les différentes pauses testées sur la Colonne H. (a) L'ordonnée à l'origine i (mg) représente la contribution du pic du particulogramme à l'ensemble des particules mobilisées. (b) La pente p (mg/g) représente la contribution de la queue du particulogramme à l'ensemble des particules mobilisées. Les valeurs de la pente sont multipliées par 100. (c) La masse cumulée d'eau critique MCE_c (g) représente la quantité d'eau qui assure le passage du comportement exponentiel au comportement linéaire (Figure III.3.3)

Ceci confirme que le comportement assez particulier de mobilisation de particules (augmentation-maximum-diminution) est principalement dicté par le pic du particulogramme dont la contribution est majoritaire à l'ensemble des particules lessivées. La pente p suit, à son tour le même comportement que l'ordonnée à l'origine i , avec un maximum aux alentours de la même durée de pause (147 h) (Figure III.3.10b). Cependant, les valeurs de p doivent être traitées avec précaution vu qu'elles sont très faibles : leur variation peut ne pas avoir une influence sensible sur la mobilisation de particules. La Figure III.3.7 montre que ces pentes sont similaires. Ce ne sont pas leurs petites différences qui influencent, les unes par rapport aux autres, les positions des courbes cumulées. Quant au paramètre MCE_c , il oscille autour de la valeur de 15 g sans montrer aucune tendance particulière en fonction de la pause (Figure III.3.10c).

3.2.2. Effet de la force ionique (Colonne G)

La colonne H a été testée avec une solution infiltrante de force ionique 10^{-5} M. Afin d'étudier si le comportement 'augmentation-maximum-diminution' de la mobilisation de particules observé sur la colonne H était lié ou pas à la force ionique utilisée, nous avons testé une autre force ionique sur la colonne G avec une 1^{ère} série de 12 pauses croissantes allant de 1 h jusqu'à 979.3 h (Figure III.3.11, 1^{ère} série) sous les conditions :

- Force ionique de la solution infiltrante $FI = 10^{-1}$ M,
- Intensité de pluie $I = 20$ mm/h,
- Créneau de pluie de durée 1 h.

La 2^{ème} série de pause sera l'objet d'étude du paragraphe 3.2.4. Les hydrogrammes correspondants aux différentes pauses testées sur la colonne G (Figure III.3.12) sont également divisés en trois phases : deux phases transitoires et une phase correspondant au régime permanent d'écoulement. La Figure III.3.12 montre l'augmentation du temps de percée avec la pause. Ceci se traduit par un décalage vers la droite des hydrogrammes pour des pauses de plus en plus importantes. Cette même tendance peut être aussi aperçue sur l'ensemble des particulogrammes de la colonne G (Figure III.3.13), où l'on peut observer également l'évolution du pic initial en fonction de la pause. Pour des pauses faibles, le pic du particulogramme est petit. Il augmente ensuite pour atteindre un maximum aux alentours d'une pause de 196.5 h, et puis il diminue pour des pauses de plus en plus grandes. De petits pics secondaires accidentels peuvent être constatés après le grand pic initial (Figure III.3.13 e, f). Comme pour la colonne H, le nombre de ces pics secondaires est faible par rapport à l'ensemble des courbes (deux sur douze).

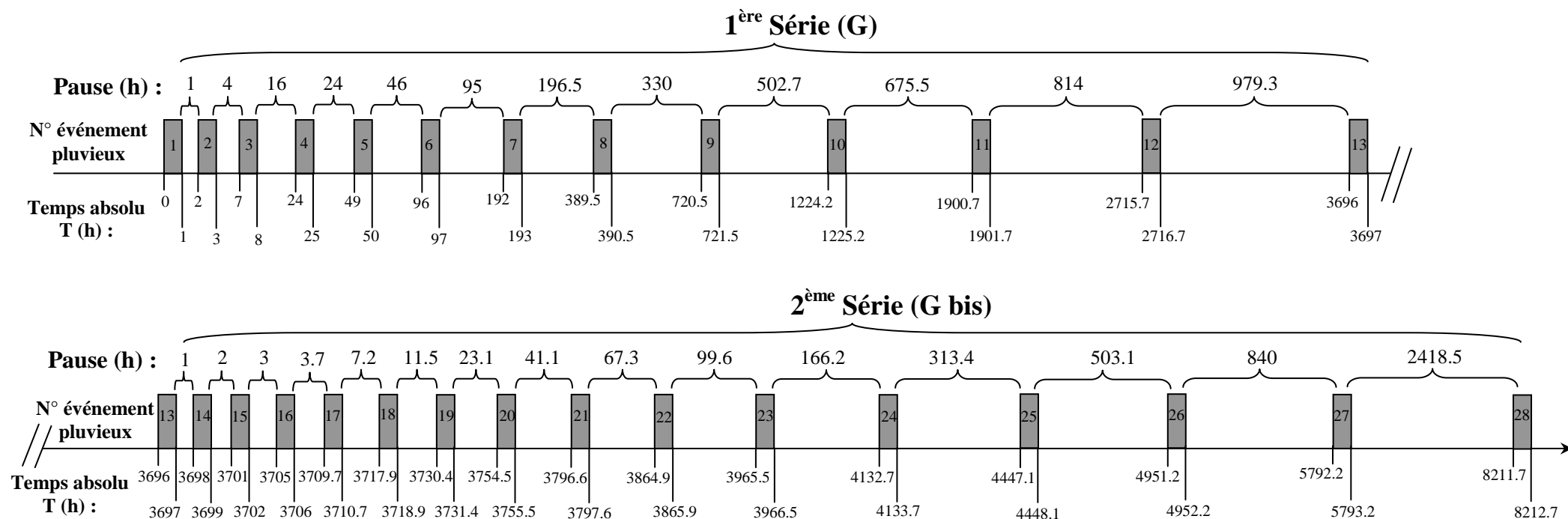


Figure III.3.11 : Historique des événements pluvieux et des pauses testées sur la colonne G. Le temps absolu marque la durée totale des essais sur la colonne. Chaque rectangle gris représente un créneau de pluie de durée 1 heure, d'intensité 20 mm/h et de force ionique 10^{-1} M. Le numéro contenu dans chaque rectangle gris représente l'ordre de l'événement pluvieux, le premier ayant commencé au temps absolu zéro. Deux séries de pauses ont été testées sur la colonne G. La 1^{ère} série comprend des pauses allant de 1 h à 979.3 h (événement pluvieux 1 à 13). La 2^{ème} série comprend des pauses allant de 1 h à 840 h (événement pluvieux 13 à 28). La série 2 démarre immédiatement après la fin de la série 1 (à la fin de l'événement 13). La durée totale de cette expérience à la fin de la série 2 (la fin de l'événement 28) est de 8212.7 h (plus de 342 jours). Nous utiliserons par la suite l'appellation G (respectivement G bis) pour désigner la 1^{ère} série (respectivement la 2^{ème} série) de pause.

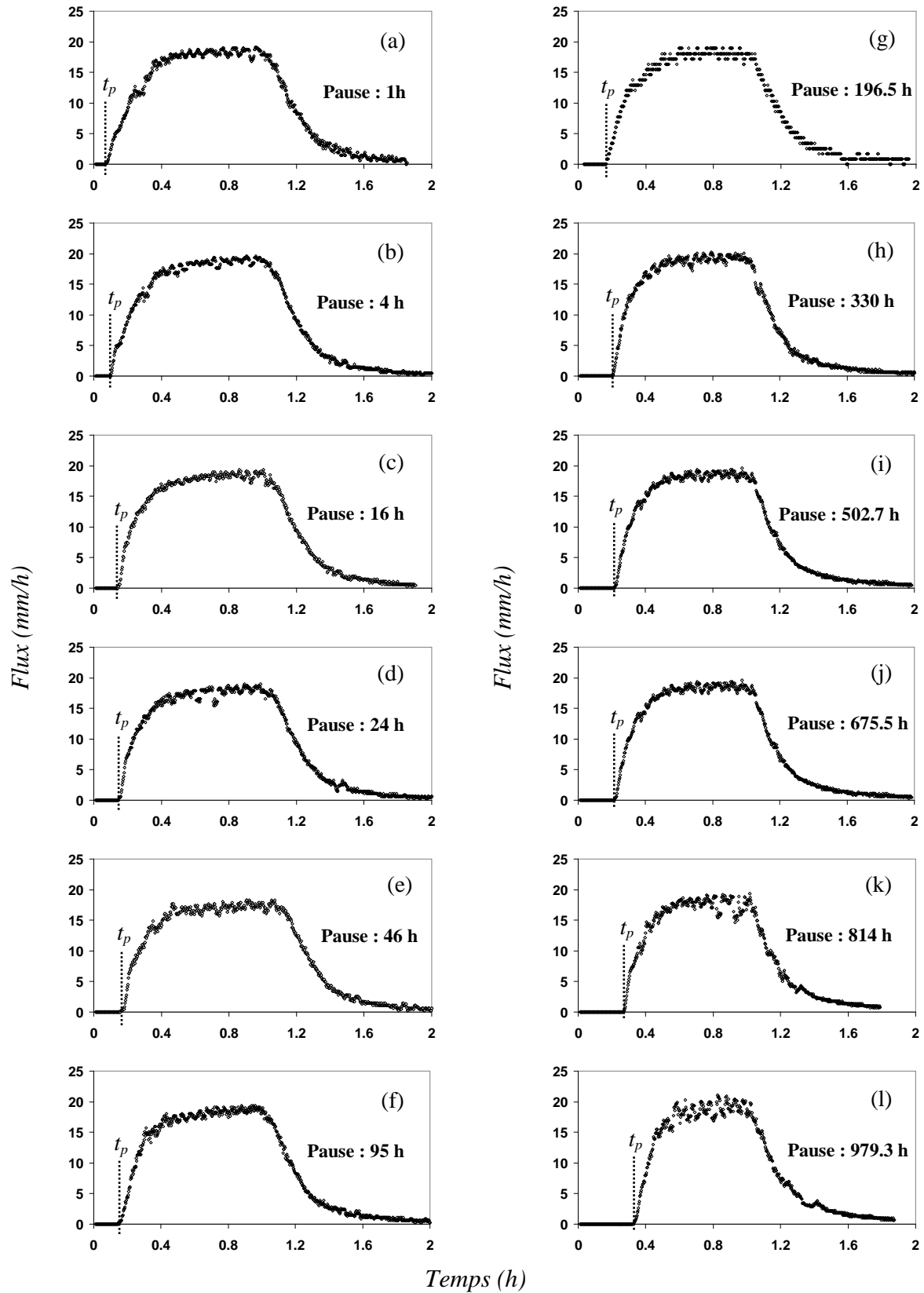


Figure III.3.12 : Ensemble des hydrogrammes de la colonne G pour des pauses allant de 1 h à 979.3 h. Le temps de percée t_p est compté à partir du début de l'irrigation et il correspond à la sortie de la première goutte d'eau (arrivée du front d'imbibition) en bas de la colonne.

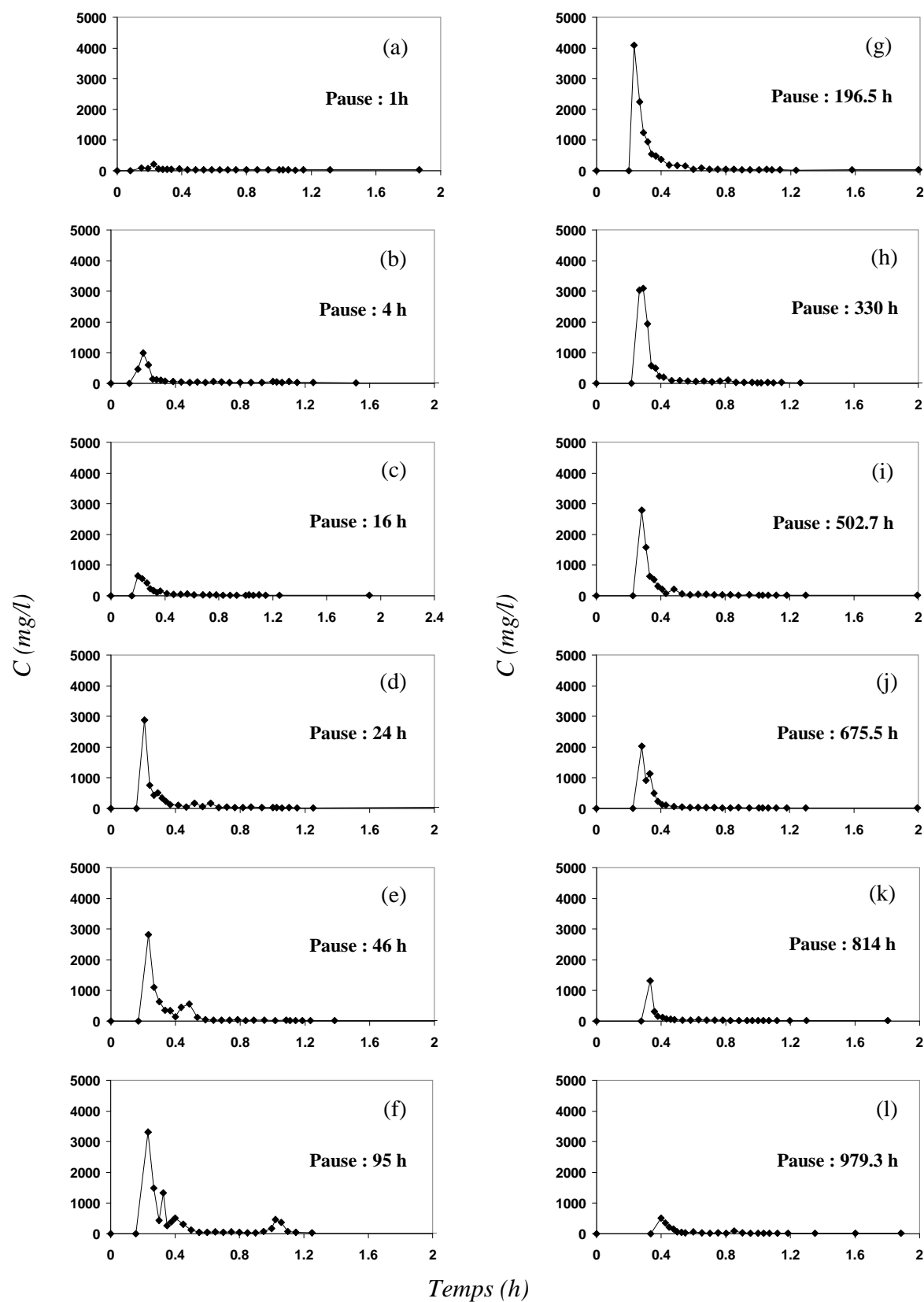


Figure III.3.13 : Ensemble des particulogrammes de la colonne G pour des pauses allant de 1 h à 979.3 h.

Les courbes cumulées de la colonne G (Figure III.3.14) montrent également une sorte de similitude entre les différents événements comme pour la colonne H. Pour une même quantité d'eau en sortie de la colonne (même cumul d'eau), la quantité totale de particules lessivées par événement pluvieux (cumul particules) augmente avec la pause jusqu'à atteindre un maximum aux alentours d'une pause de 196.5 h, puis diminue pour des pauses beaucoup plus grandes (Figure III.3.14).

L'évolution de la quantité totale de particules lessivées par événement pluvieux en fonction de la pause (calculée pour un même cumul ~ 230 g d'eau sortant de la colonne) montre le même comportement de mobilisation assez particulier (Figure III.3.15a) :

La quantité de particules mobilisées par événement pluvieux augmente avec la durée de pause jusqu'à atteindre un maximum aux alentours de 196.5 h, puis elle diminue pour des durées de pauses de plus en plus importantes.

L'évolution du temps de percée en fonction de la durée de pause (Figure III.3.15b) est semblable à celle de la colonne H : une augmentation rapide jusqu'à des pauses de l'ordre de 48 h suivie d'une augmentation plus lente pour des pauses plus longues, avec le maximum de mobilisation qui se produit dans une zone de transition après la fin du drainage gravitaire et le début de la reprise de l'évaporation. Ceci suggère, encore une fois, que les mécanismes de mobilisation seraient liés à l'avancement progressif du front de séchage au sein de la colonne.

L'évolution des trois paramètres i , p et MCE_c en fonction de la pause (Figure III.3.16) montre que l'ordonnée à l'origine i (Figure III.3.16a) suit le même comportement que la quantité totale de particules lessivées par événement pluvieux (Figure III.3.15a) avec un maximum qui se produit pour la même durée de pause (196.5 h). Ceci confirme encore une fois que le comportement assez particulier de mobilisation de particules 'augmentation-maximum-diminution' est principalement dicté par le pic du particulogramme dont la contribution est majoritaire à l'ensemble des particules lessivées. Hormis le point correspondant à la pause de 24 h, la pente p suit le même comportement que l'ordonnée à l'origine i avec un maximum aux alentours de la même durée de pause (196.5 h) (Figure III.3.16b). Quant au paramètre MCE_c , il ne montre aucune tendance particulière en fonction de la pause (Figure III.3.16c).

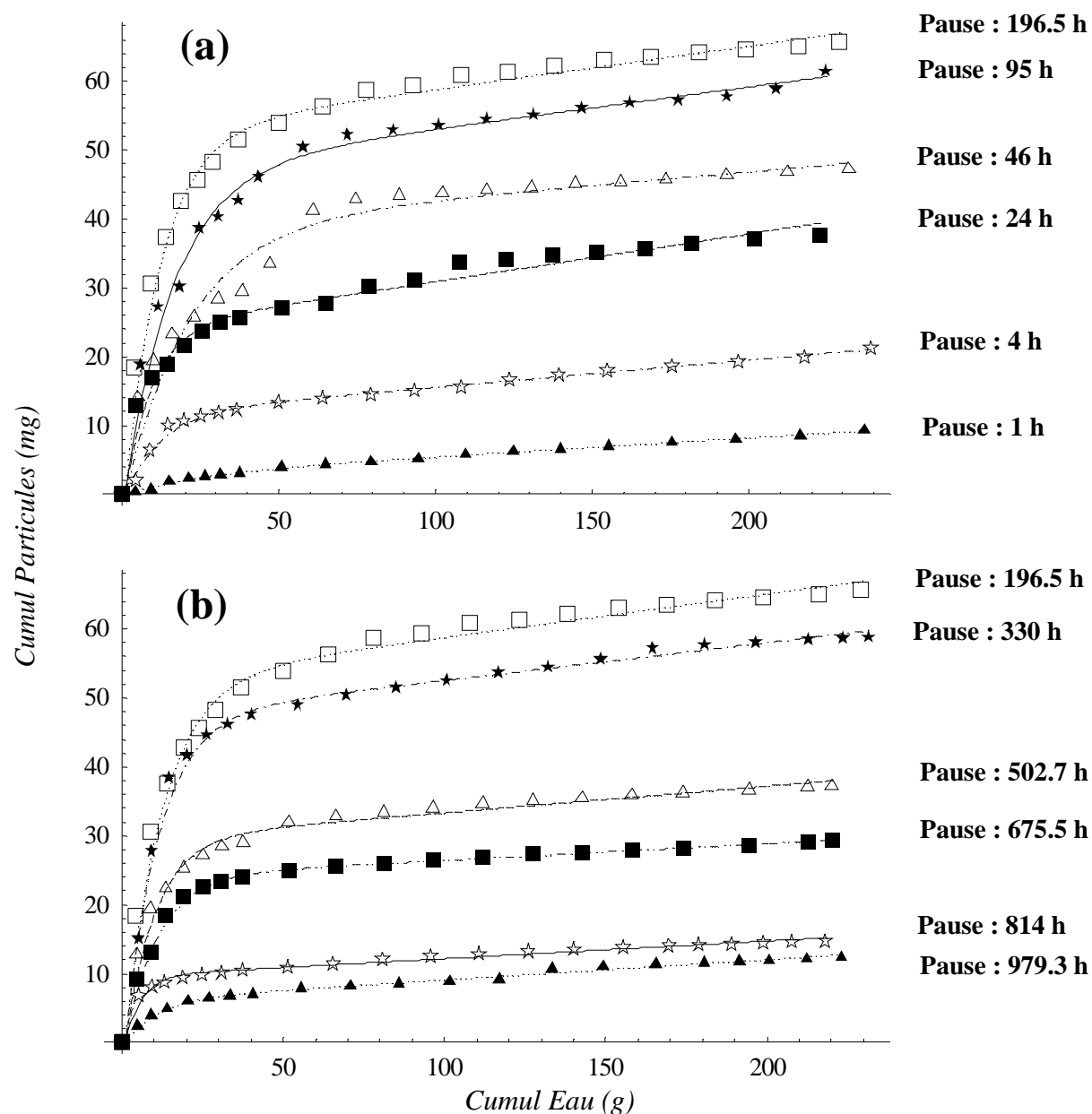


Figure III.3.14 : Ensemble des courbes cumulées pour différentes durées de pause testées sur la colonne G. (a) Durées de pause allant de 1 h à 196.5 h. (b) Durées de pauses allant de 196.5 h à 979.3 h. Les lignes pointillées sont les courbes simulées selon l'expression (1). L'erreur sur la masse cumulée de particules a été estimée en prenant en considération l'erreur de mesure sur la balance, l'erreur de mesure avec le spectrophotomètre, et l'erreur sur la régression linéaire d'étalonnage de celui-ci. Densité Optique. La somme de toutes ces erreurs à la fin de l'événement pluvieux était inférieure à 1 mg.

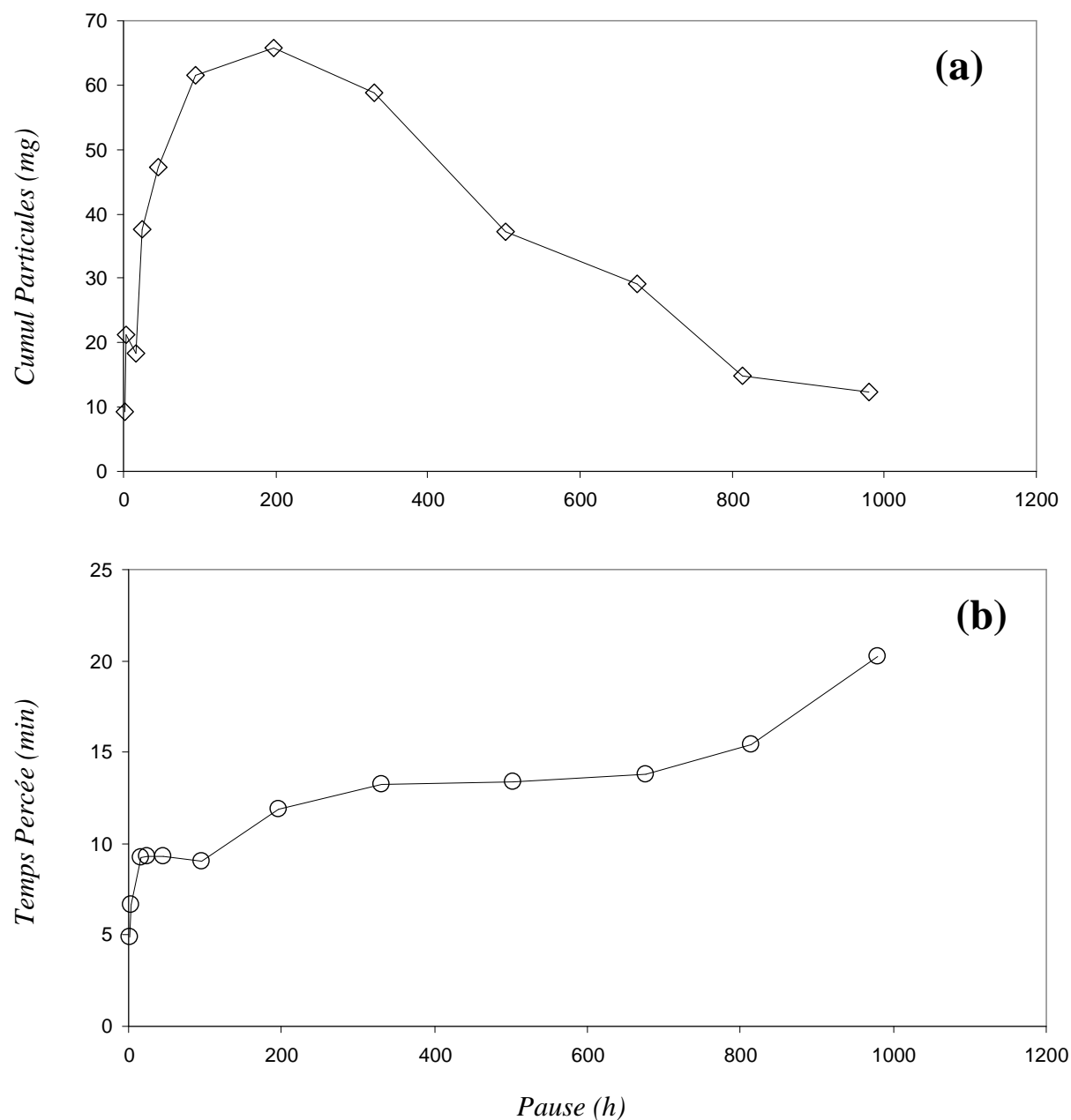


Figure III.3.15 : Colonne G. (a) Masse cumulée de particules lessivées par événement pluvieux en fonction de la durée de pause. Cette courbe est déduite de l'ensemble des courbes cumulées (Figure III.3.14) en prenant un même cumul d'eau en sortie de la colonne (~ 230 g) et en déduisant pour chaque pause le cumul de particules correspondant. (b) Temps de percée de chaque événement pluvieux pour les différentes pauses. Notons que l'intensité de pluie est la même (20 mm/h) pour toutes les événements.

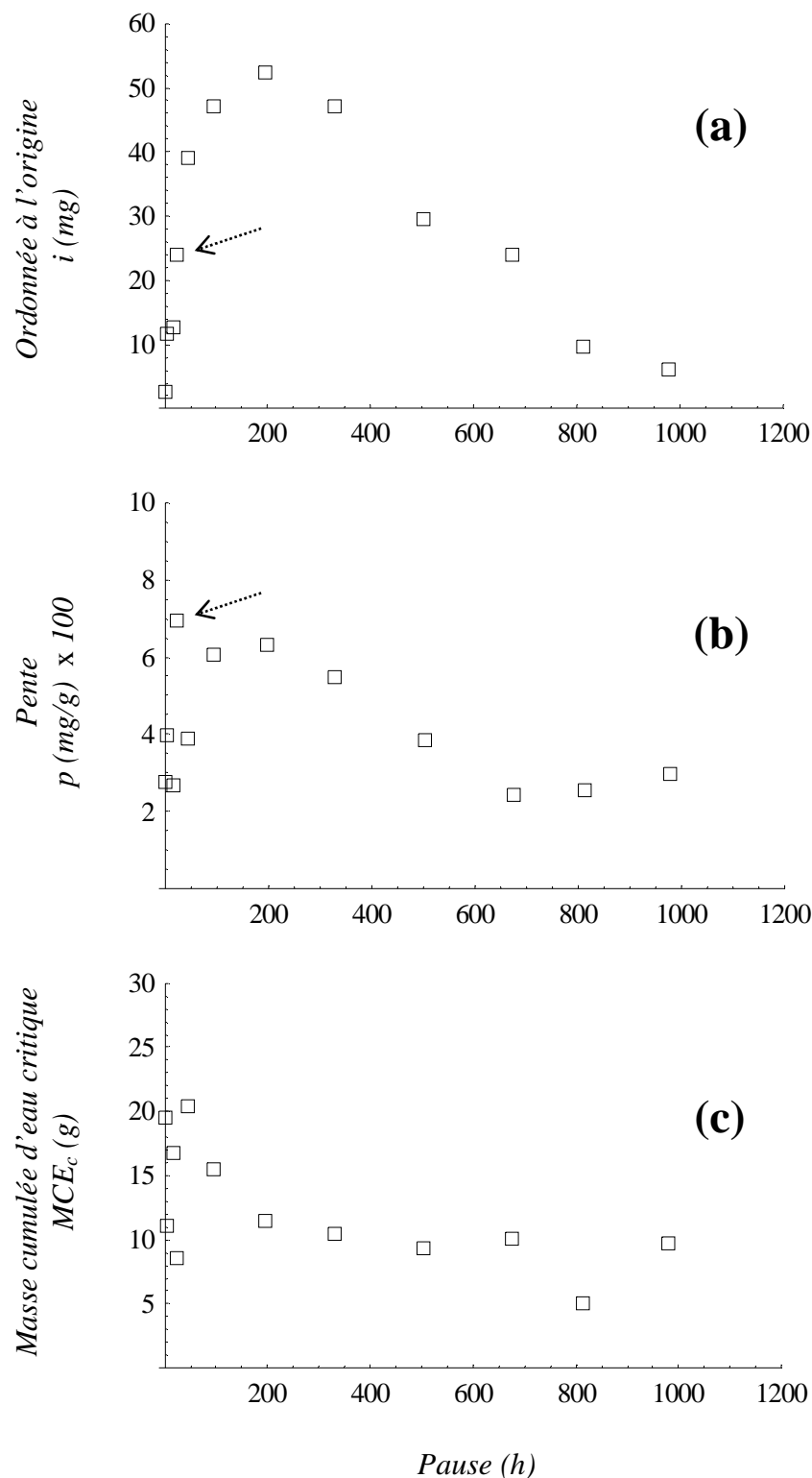


Figure III.3.16 : Paramètres correspondant à la simulation des courbes cumulées selon l'expression (1), et ceci pour les différentes pauses testées sur la Colonne G. (a) L'ordonnée à l'origine i (mg) représente la contribution du pic du particulogramme à l'ensemble des particules mobilisées. (b) La pente p (mg/g) représente la contribution de la queue du particulogramme à l'ensemble des particules mobilisées. Les valeurs de la pente sont multipliées par 100. (c) La masse cumulée d'eau critique MCE_c (g) représente la quantité d'eau qui assure le passage du comportement exponentiel au comportement linéaire (Figure III.3.3). Les flèches indiquent les valeurs correspondant à la pause de 24 h.

Une comparaison des valeurs des paramètres i , p et MCE_c entre les colonnes H et G montre qu'ils ont presque les mêmes valeurs et qu'ils varient dans les mêmes intervalles : i varie entre 2 et 57 mg, p varie entre 0.01 et 0.07 mg/g et MCE_c varie entre 5 et 25 g. La valeur p de la Figure III.3.16b (correspondante à la pause 24 h) qui se détache du comportement d'ensemble est assez significative quant à l'influence de la pente (contribution de la queue du particulogramme) sur la mobilisation des particules. En effet, l'ordonnée à l'origine i pour la même durée de pause, 24 h (Figure III.3.16a) s'insère bien dans l'intervalle de l'ensemble des ordonnées à l'origine (qui est d'ailleurs le même que le comportement de mobilisation de la Figure III.3.15a). Par conséquent, une variation brusque de la pente p ne semble pas influencer sensiblement le comportement de mobilisation de particules. Ce comportement est plutôt principalement contrôlé par l'ordonnée à l'origine qui reflète la contribution du pic du particulogramme.

En résumé, les résultats des colonnes G ($FI = 10^{-1}$ M) et H ($FI = 10^{-5}$ M) montrent la même forme du comportement de mobilisation en fonction de la pause (Figure III.3.17). Evidemment, la comparaison des quantités mobilisées ne peut être faite entre G et H sans tenir compte du fait qu'il s'agit de deux colonnes de sol différentes ayant probablement des réseaux de pores et des structures différentes. Bien que les deux colonnes aient été prélevées l'une à côté de l'autre, des différences de structure peuvent toujours exister entre elles. Ces différences de structure, aussi faibles soient elles, induisent des changements importants au niveau de la mobilisation de particules.

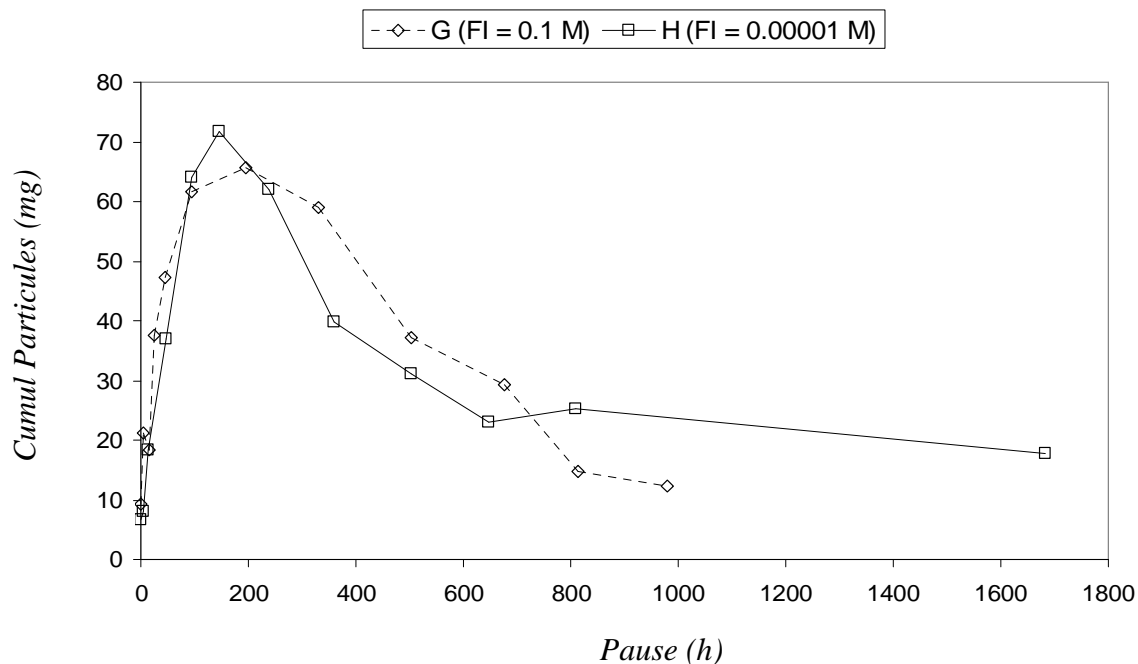


Figure III.3.17 : Comparaison du comportement de mobilisation de particules en fonction de la pause entre les deux colonnes G ($FI = 10^{-1}$ M) et H ($FI = 10^{-5}$ M). Le comportement est reproductible indépendamment de la force ionique.

Le comportement ‘montée-maximum-descente’ apparaît **reproductible** sur deux colonnes différentes, et **indépendant de la force ionique** utilisée sur chacune d’elles. La solution infiltrante ayant une force ionique $FI = 10^{-5}$ M (colonne H) peut être assimilée à de l’eau désionisée vu la quantité infiniment faible de $MgCl_2$ qu’elle contient. Ces résultats nous guident préférentiellement vers une recherche de causes physiques plutôt que chimiques pour décrire l’évolution du stock de particules mobilisables durant la pause.

3.2.3. Est-ce une illusion ?

Le comportement de la mobilisation en fonction de la pause observé sur les colonnes G et H pose la question principale suivante : est ce que le comportement ‘montée-maximum-descente’ résulte de la manière dont l’expérimentateur a choisi de faire les essais de pause ? Plus précisément, est-ce le fait d’avoir imposé des pauses croissantes qui conduit au comportement observé ?

Nous allons traiter le cas particulier d’un mécanisme de mobilisation associé à des pauses croissantes pour clarifier cette question. Bien que les mécanismes possibles de mobilisation feront l’objet du chapitre 4 ci-après, il est nécessaire, à ce stade, d’aborder ce thème non pas dans le but d’expliquer ce qui se passe, mais plutôt dans le but de voir si le comportement observé est une simple illusion (ou un artéfact expérimental).

Supposons que pendant la pause, des particules se détachent de la matrice solide vers l’eau immobile. Tout le long de la pause, les particules vont s’accumuler dans l’eau immobile jusqu’au passage du front d’imbibition de l’événement pluvieux suivant. Ce front va entraîner avec lui toutes les particules accumulées dans l’eau immobile que ce soit par adsorption à l’interface eau-air ou par la force d’accélération du flux. La récupération de cette grande quantité de colloïdes pendant un temps court (« flush ») apparaît macroscopiquement sous la forme du pic initial du particulogramme.

Maintenant, considérons le cas particulier d’un détachement physico-chimique de particules, pendant la pause, en suivant une cinétique de premier ordre telle que :

$$\frac{dm_r}{dt} = -k m_r \quad (2)$$

Avec m_r la masse de particules restantes sur la matrice solide (ou stock disponible au temps t), t le temps, et k le coefficient de détachement. Si la matrice solide contenait au début de la pause une masse initiale m_0 , la masse cumulée de particules détachées pendant la pause m_d serait dans ce cas :

$$m_d = m_0(1 - e^{-kt}) \quad (3)$$

Sous cette hypothèse, il est clair que plus la pause est longue, plus la masse m_d va augmenter jusqu'à atteindre un niveau de saturation correspondant à m_0 (i.e. toute la masse disponible s'est détachée). Ensuite, la masse m_d sera lessivée par le front d'imbibition de l'événement suivant.

La description ci-dessus n'exclut pas une mobilisation additionnelle de particules pendant l'événement pluvieux, qui viendrait se superposer aux particules mobilisées pendant la pause. Cependant, il faut rappeler que selon les conditions expérimentales (notamment intensité de pluie et force ionique de la solution infiltrante constantes) le seul paramètre qui change pour une colonne donnée est la durée de pause. Par conséquent, tout changement de la quantité mobilisée n'est que le résultat d'un changement de durée de pause.

Soit $m_{0,1}$ la masse initiale de particules présente dans la matrice solide avant la 1^{ère} pause (i.e. pause la plus courte). A la fin de la 1^{ère} pause (*Pause*₁), la masse restante sur la matrice solide est inférieure à $m_{0,1}$. Cette masse restante sera la masse initiale de la pause suivante (*Pause*₂), soit $m_{0,2} < m_{0,1}$. Ceci se répète pour toutes les pauses suivantes. L'évolution de la masse détachée $m_{d,i}$ en fonction de la durée de pause t_i , équation (3), peut être calculée pour différentes masses initiales $m_{0,i}$ présentes sur la matrice solide au début de chaque *Pause*_i (Figure III.3.18). La valeur de $m_{d,i}$ est quasi nulle pour les deux cas extrêmes suivants : (i) une durée de pause t_i quasi nulle avec une masse initiale $m_{0,i}$ très grande (c'est le cas de la première pause), ou bien (ii) une masse initiale $m_{0,i}$ quasi nulle avec une durée de pause t_i très grande (c'est le cas de la dernière pause). Entre ces deux extrêmes, un maximum de la quantité de masse détachée $m_{d,i}$ aura lieu, lorsque les pauses sont considérées par ordre croissant. Ainsi, la courbe reliant les valeurs $m_{d,i}$ à la fin de chaque *Pause*_i (courbe en étoiles) suit le chemin "montée-maximum-descente" (Figure III.3.18).

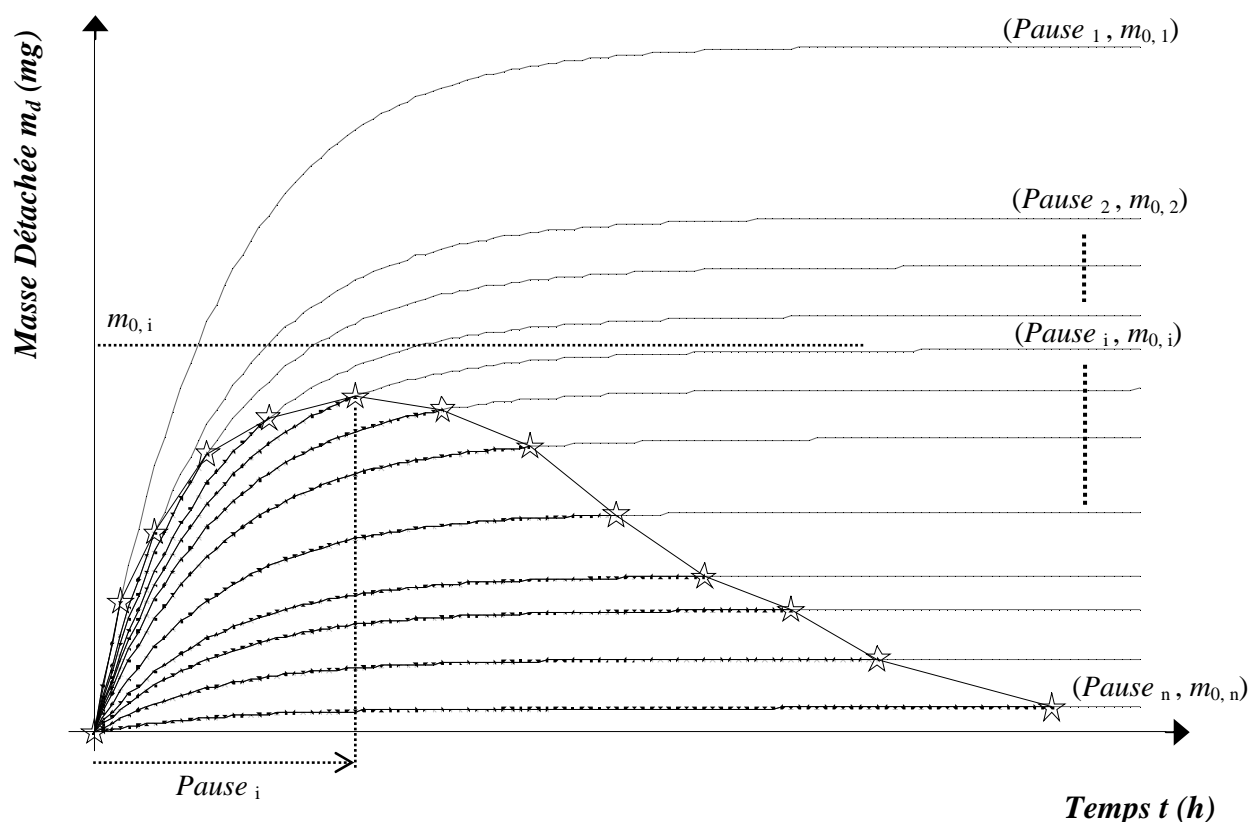


Figure III.3.18 : Les courbes grises représentent l'évolution de la masse de particules détachées (accumulées dans l'eau immobile) en fonction du temps suivant l'équation (3), et ceci pour différentes masses initiales $m_{0,i}$ présentes sur la matrice solide au début de la *Pause_i*. Chaque courbe varie depuis l'origine ($m_{d,i} = 0$ à $t = 0$) jusqu'au détachement total ($m_{d,i} = m_{0,i}$). Les étoiles sur chaque courbe indiquent le temps correspondant à la fin de la pause : c'est l'instant à partir duquel une courbe cesse d'être parcourue (courbe pointillée). Ensuite, c'est la courbe suivante (correspondant à la pause suivante) qui sera de nouveau parcourue depuis l'origine jusqu'à la fin de la pause correspondante. La masse initiale $m_{0,i}$ diminue d'une pause à une autre jusqu'à l'épuisement total de particules sur la matrice solide.

Si les pauses sont faites d'une manière croissante, le passage d'une courbe à une autre (la courbe des étoiles) peut produire un effet montée-maximum-descente similaire au comportement de mobilisation observé sur les colonnes G et H.

Si ce scénario est vrai, cela voudrait dire que le comportement de mobilisation particulier observé sur les colonnes G et H ne serait autre chose qu'une pure illusion due à la manière dont les pauses ont été imposées (par ordre croissant) et à la nature même du mécanisme de mobilisation (cinétique du 1^{er} ordre). Suivant ce mécanisme de mobilisation, la dernière pause correspondrait à la masse initiale la plus basse ($m_{0,n}$) et à la durée de pause la plus longue (*Pause_n*). Vu la très grande durée t_n de la *Pause_n* (le temps tend vers l'infini), la masse détachée $m_{d,n}$ correspondante sera très proche de $m_{0,n}$. Si jamais une pause supplémentaire est testée après la *Pause_n*, la masse détachée sera inférieure à $m_{d,n}$.

Après la 1^{ère} série de pauses, il a été donc indispensable de refaire de nouveaux essais de pauses (2^{ème} série de pauses) après la plus longue durée de pause de la 1^{ère} série. Le but est

d'évaluer si les nouvelles masses détachées dépassent ou pas celle correspondant à la dernière et la plus longue des pauses de la 1^{ère} série. Si ce dépassement n'a pas lieu, cela voudra dire que le mécanisme le plus probable de détachement pendant la pause peut être représenté par une cinétique de 1^{er} ordre. Par contre, si le dépassement a lieu, nous pouvons conclure que la cinétique de 1^{er} ordre n'est pas le mécanisme de mobilisation principal durant la pause. Cette hypothèse sera vérifiée sur la colonne G dans le paragraphe suivant.

3.2.4. Exclusion de la possibilité d'illusion (Colonne G bis)

Après la première série d'essais de pauses sur la colonne G, une deuxième série de pauses a été entamée en suivant le même protocole expérimental. L'appellation G bis sera par la suite utilisée pour désigner cette deuxième série d'essais sur la colonne G.

La deuxième série de pauses consiste en 14 pauses croissantes allant de 1 h à 840 h (Figure III.3.11, 2^{ème} série). Les conditions expérimentales de G bis sont les mêmes que celles de G :

- Force ionique de la solution infiltrante $FI = 10^{-1}M$,
- Intensité de pluie $I = 20 \text{ mm/h}$,
- Créneau de pluie de durée 1 h.

Les raisons pour la poursuite d'une deuxième série de pauses sur la colonne G étaient :

- Premièrement, il fallait répondre à la problématique soulevée au paragraphe 3.2.3 concernant la possibilité 'd'illusion' de nos observations expérimentales : cinétique de détachement de 1^{er} ordre couplée avec des pauses croissantes.
- Deuxièmement, il fallait vérifier si la diminution de mobilisation pour les pauses les plus grandes n'était due à un nombre croissant d'événements pluvieux. Si c'est le cas, les essais de pauses supplémentaires devraient maintenir cette tendance vers une diminution quelque soit la durée des nouvelles pauses testées.
- Troisièmement, si les deux points précédents ne sont pas vérifiés et que le comportement observé 'montée-maximum-descente' de mobilisation se reproduirait sur G bis, il fallait établir comment et dans quelle mesure cette reproductibilité a lieu.

Certains résultats expérimentaux de G bis sont donnés dans l'annexe 2 : les hydrogrammes (Annexe 2.1), les particulogrammes (Annexe 2.2), les courbes cumulées (Annexe 2.3), et les paramètres de l'expression (1) (Annexe 2.4). Ces données permettent d'établir l'évolution de la quantité totale de particules mobilisées par événement pluvieux et ceci pour les différentes

pauses testées sur G bis. Il est intéressant de comparer sur un même graphique les principaux résultats de G et de G bis (Figure III.3.19).

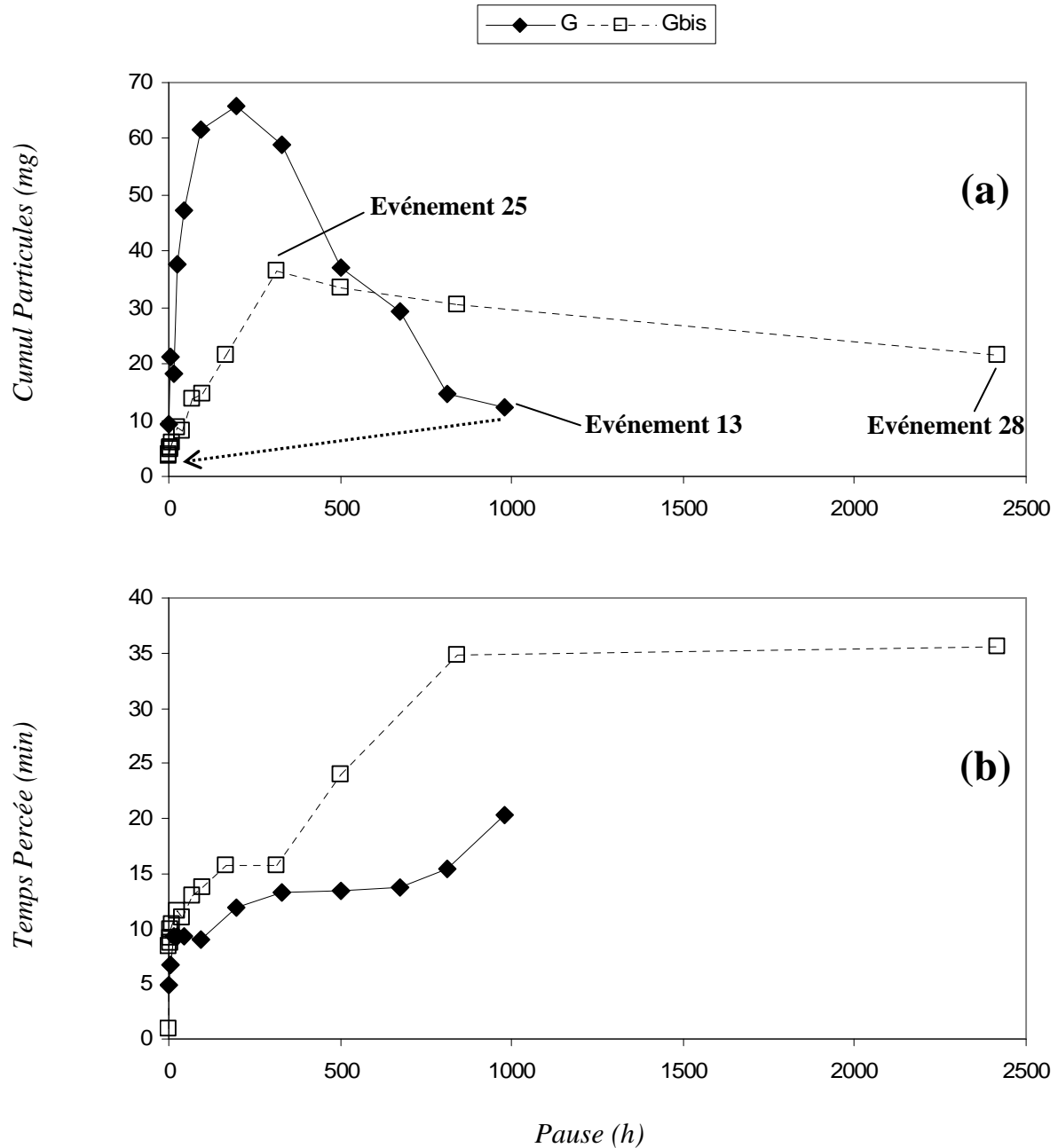


Figure III.3.19 : Comparaison des résultats de G (1^{ère} série de pauses) et G bis (2^{ème} série de pauses). (a) Masse cumulée de particules lessivées par événement pluvieux en fonction de la pause. La flèche indique que la première pause de G bis (i.e. la plus courte de la 2^{ème} série) a été testée immédiatement après la dernière pause de G (la plus longue de la 1^{ère} série). La somme des erreurs à la fin de chaque événement pluvieux est inférieure à 1 mg. (b) Temps de percée de chaque événement pluvieux en fonction de la pause.

Le comportement de mobilisation montée-maximum-descente se reproduit de nouveau sur G bis (Figure III.3.19a) avec les trois caractéristiques suivantes :

- 1) Une montée moins rapide,
- 2) Un maximum de 38.3 mg (plus faible) pour une pause de 313.4 h (plus grande),
- 3) Une descente plus étalée.

L'évolution du temps de percée en fonction de la pause pour G bis montre une augmentation rapide jusqu'à 48 h de pause (perte d'eau par drainage gravitaire) suivie d'une augmentation plus lente pour des pauses plus grandes (perte d'eau par évaporation) (Figure III.3.19b). Cependant, la comparaison entre G et G bis montre que pour des mêmes durées de pause, le temps de percée de G bis est plus grand que celui de G. Il est fort possible que la différence entre les temps de percée de G et G bis soit due à un changement (ou une évolution) du réseau poral après plusieurs événements pluvieux, comme cela a été observé par Rousseau (2003). Si les mécanismes de mobilisation de particules sont liés à l'état du réseau poral, il serait possible d'expliquer la différence du cumul de particules drainées entre G et G bis (Figure III.3.19a) à l'aide de la différence des temps de percée entre G et G bis (Figure III.3.19b).

A partir de pauses supérieures à 67 h, le cumul de particules mobilisées de G bis dépasse le dernier cumul de G (celui correspondant à la dernière pause (979.3 h) de la 1^{ère} série). Ce cumul de particules augmente pour les pauses suivantes, montrant que l'hypothèse d'une cinétique de détachement de 1^{er} ordre pendant la pause (paragraphe 3.2.3) n'est pas valable.

Remarque : Nombre d'événements successifs

L'augmentation du nombre d'événements de pluie (13 événements sur la colonne G suivis par 15 événements sur la colonne G bis, cf. Figure III.3.11) n'explique pas un épuisement attendu du nombre de particules drainées. En effet, après la diminution du cumul de particules de G (fin de l'événement 13) (Figure III.3.19a) on observe à nouveau une augmentation de ce cumul qui dépasse la dernière valeur correspondant à l'événement 13 pour les événements suivants 14 à 25 (colonne G bis).

Il est possible que l'amplitude de mobilisation soit atténuée avec un nombre croissant d'événements pluvieux. Cependant, cette atténuation ne met pas en cause la reproductibilité du comportement de mobilisation 'montée-maximum-descente'.

3.2.5. Effet d'un lessivage intensif préalable aux essais de pauses (Colonne E)

A différence des autres colonnes, la colonne E a été utilisée pour la mesure de la conductivité hydraulique à saturation (K_{sat}). Cette colonne a été utilisée ensuite pour vérifier si l'expérience de mesure de K_{sat} avait une influence sur le comportement de la mobilisation vis-à-vis de la pause. Cela a un intérêt après les conclusions faites sur la colonne G bis concernant les modifications du réseau poral après plusieurs événements pluvieux. En effet, pendant l'expérience de K_{sat} la colonne est traversée pendant deux heures par des quantités très importantes d'eau sous charge hydraulique. Malgré une saturation lente de la colonne, il est toujours probable qu'il y ait des changements de structure pendant ce genre d'expérience.

Aussi, 14 pauses croissantes (allant de 7 h à 929 h) ont été testées sur la colonne E (Figure III.3.20) dans les mêmes conditions expérimentales que colonne G :

- Force ionique de la solution infiltrante $FI = 10^{-1}M$,
- Intensité de pluie $I = 20 \text{ mm/h}$,
- Créneau de pluie de durée 1 h.

Les hydrogrammes, les particulogrammes, les courbes cumulées, ainsi que les paramètres de l'expression (1) sont données respectivement en Annexe 2.5, Annexe 2.6, Annexe 2.7, et Annexe 2.8. L'évolution du cumul de particules en fonction de la pause (Figure III.3.21a) montre que le comportement de mobilisation montée-maximum-descente se reproduit sur la colonne E, avec le maximum aux alentours d'une pause de 407 h. Quant au temps de percée il augmente rapidement jusqu'à une pause de 48 h, ensuite son augmentation devient plus faible (Figure III.3.21b).

Une comparaison du comportement de mobilisation entre les colonnes G, G bis, et E (Figure III.3.22) montre que E et G bis sont proches l'une de l'autre : (i) les maximums ont presque la même amplitude, (ii) les pauses pour lesquelles se produisent les maximums se situent dans la plage 300 à 400 h, (iii) la montée et la descente sont moins raides que celles de G et sont plus étalées dans le temps. Ces résultats semblent indiquer que la colonne ayant subi une expérience de K_{sat} a un comportement en mobilisation de particules assez proche d'une colonne ayant subi préalablement 12 événements pluvieux successifs.

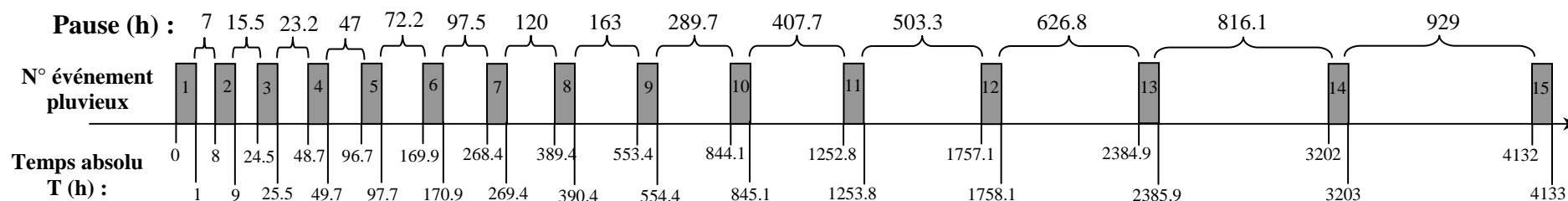


Figure III.3.20 : Historique des événements pluvieux et des pauses testées sur la colonne E. Le temps absolu marque la durée totale des essais sur la colonne. Chaque rectangle gris représente un créneau de pluie de durée 1 heure, d'intensité 20 mm/h et de force ionique 10^{-1} M. Le numéro contenu dans chaque rectangle gris représente l'ordre de l'événement pluvieux, le premier ayant commencé au temps absolu zéro. La série de pauses testées sur la colonne E comprend des pauses allant de 7 h à 929 h. La durée totale de cette expérience à la fin de l'événement 15 est de 4133 h (plus de 172 jours).

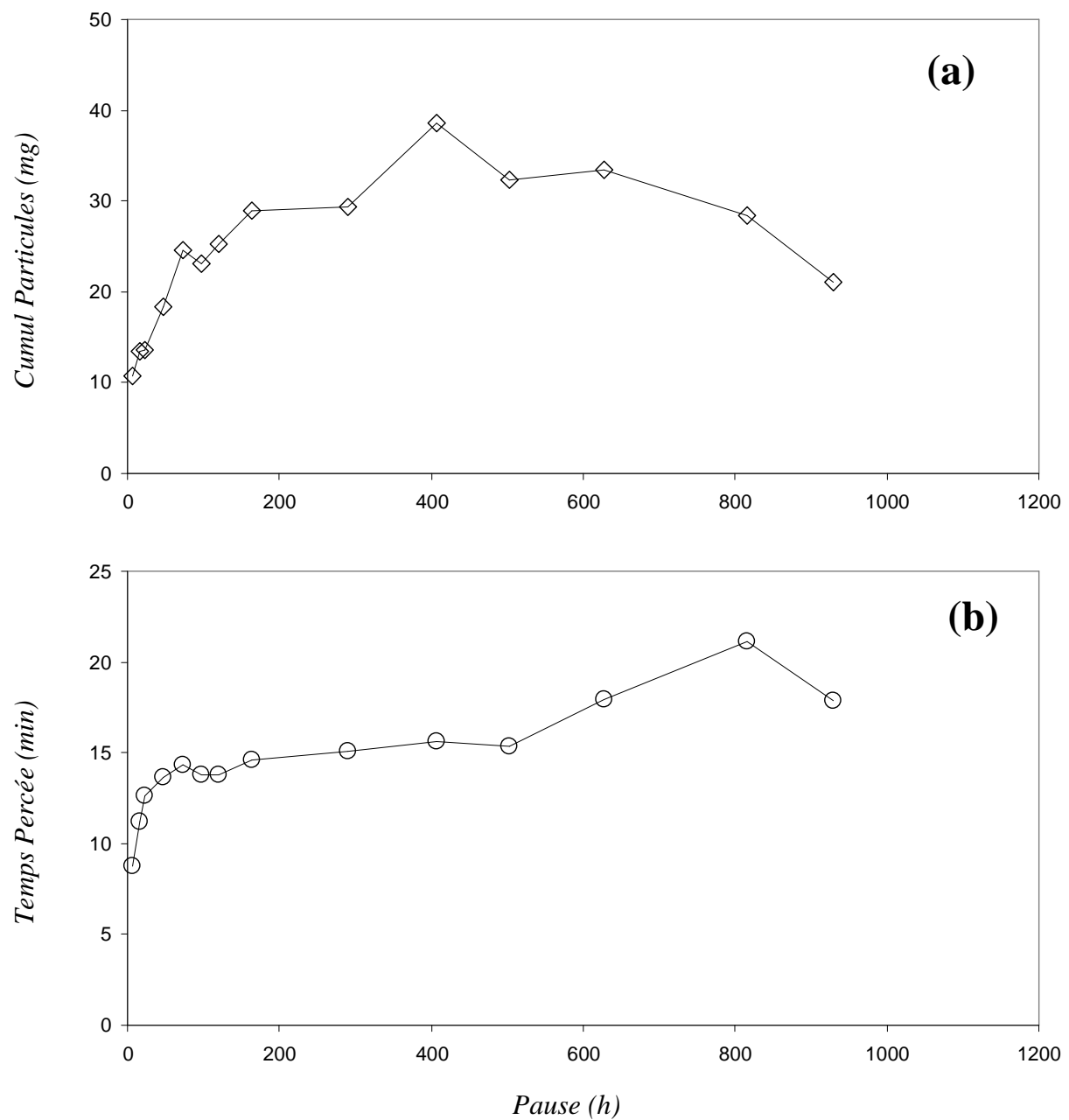


Figure III.3.21 : Colonne E. (a) Masse cumulée de particules lessivées par événement pluvieux pour les différentes pauses testées sur la colonne E. Cette courbe est déduite de l'ensemble des courbes cumulées (Annexe 2.7) en prenant un même cumul d'eau en sortie de la colonne (~ 230 g) et en déduisant pour chaque pause le cumul de particules correspondant. (b) Temps de percée de chaque événement pluvieux pour les différentes pauses testées sur la colonne E. Notons que l'intensité de pluie est la même (20 mm/h) pour toutes les événements.

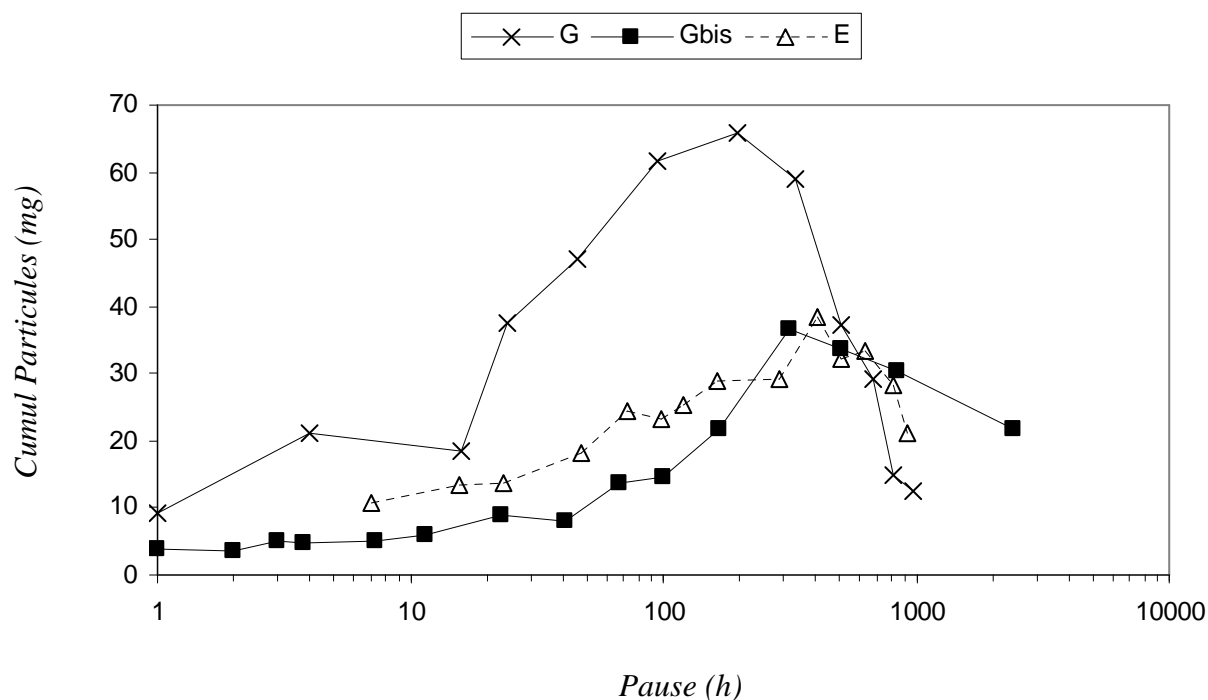


Figure III.3.22 : Comparaison des résultats de mobilisation de particules en fonction de la pause pour les colonne G, G bis, et E. Notons que l'intensité de pluie (20 mm/h) et la force ionique de la solution infiltrante (10^{-1} M) sont les mêmes pour tous les événements de ces trois colonnes. La somme des erreurs à la fin de chaque événement pluvieux est inférieure à 1 mg. Une échelle logarithmique a été choisie pour la pause afin de mieux visualiser l'ensemble des courbes.

3.2.6. Effet de l'intensité de pluie (Colonne F)

Dans tous les essais de pauses menés sur les colonnes H, G, et E, les événements pluvieux consistaient en des créneaux de durée 1h et d'intensité de pluie de 20 mm/h. Afin de vérifier si les résultats de mobilisation déjà observés ces colonnes pourraient être influencés par l'intensité de pluie utilisée, nous avons testé des pauses croissantes avec une autre intensité de pluie sur une autre colonne de sol à partir d'un même état initial. C'est ce qui a été fait sur la colonne F, en testant par ordre croissant 14 pauses allant de 1 h jusqu'à 3815 h (Figure III.3.23). Les conditions expérimentales sont constantes tout le long du test :

- Force ionique de la solution infiltrante $FI = 10^{-1}M$,
- Intensité de pluie $I = 30$ mm/h,
- Créneau de pluie de durée $2/3$ h.

La durée du créneau a été raccourcie dans la proportion inverse de l'augmentation de l'intensité, afin d'injecter la même quantité d'eau dans la colonne (soit $2/3 \times 30$ mm/h = 20 mm/h).

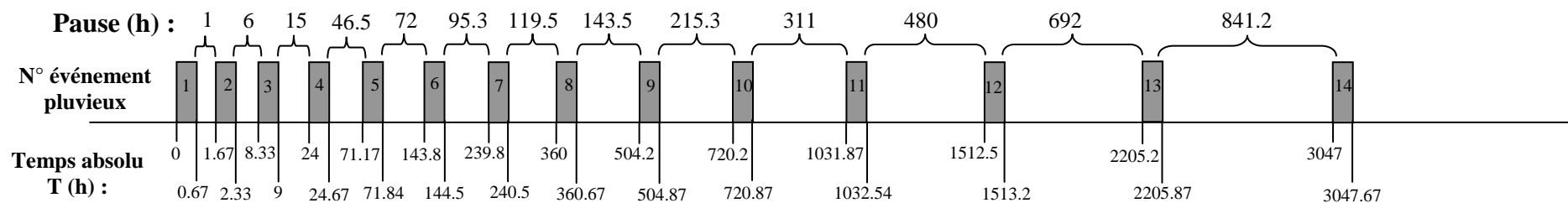


Figure III.3.23 : Historique des événements pluvieux et des pauses testées sur la colonne F. Le temps absolu marque la durée totale des essais sur la colonne. Chaque rectangle gris représente un créneau de pluie de durée 2/3 heure, d'intensité 30 mm/h et de force ionique 10^{-1} M. Le numéro contenu dans chaque rectangle gris représente l'ordre de l'événement pluvieux, le premier ayant commencé au temps absolu zéro. La série de pauses testées sur la colonne F comprend des pauses allant de 1 h à 841.2 h. La durée totale de cette expérience à la fin de l'événement 14 est de 3047.67 h (plus de 126 jours).

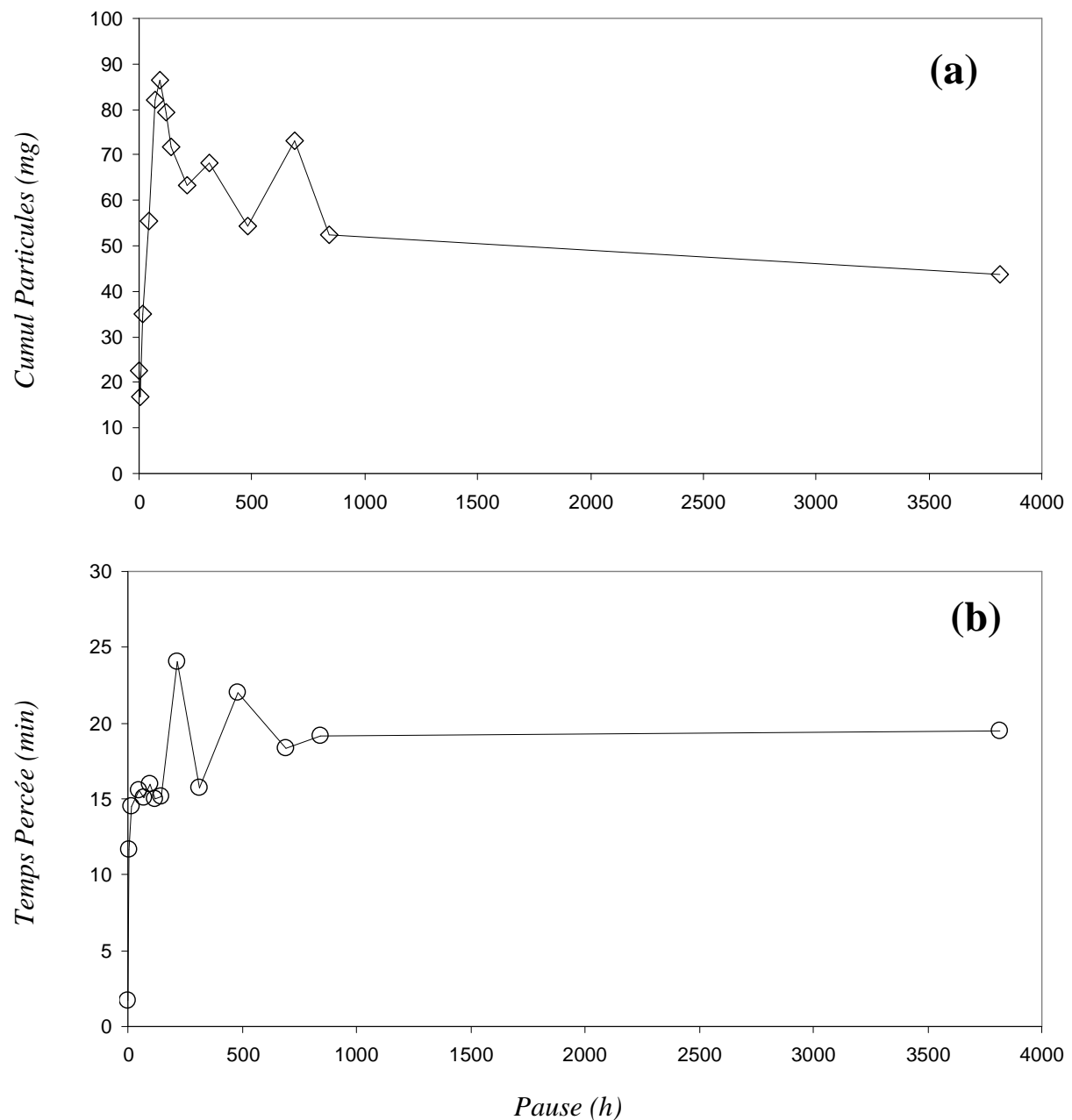


Figure III.3.24 : Colonne F. (a) Masse cumulée de particules lessivées par événement pluvieux pour les différentes pauses testées sur la colonne F. (b) Temps de percée de chaque événement pluvieux pour les différentes pauses testées sur la colonne E. Notons que l'intensité de pluie est la même (30 mm/h) pour tous les événements.

Il faut remarquer que lors de l'extraction de la colonne F, celle-ci contenait une grosse cavité à la base. Cet incident peut constituer une source d'instabilité structurale pouvant perturber fortement la mobilisation des particules. C'est ce que semblent indiquer les résultats de

mobilisation de particules en fonction de la pause pour la colonne F (Figure III.3.24a). Bien que le comportement de mobilisation ‘montée-maximum-descente’ soit plus ou moins reproduit (malgré une descente très lente), de fortes oscillations perturbent la partie descendante de la courbe. Ces mêmes oscillations sont présentes sur l’évolution du temps de percée en fonction de la pause (Figure III.3.24b), ce qui suggère, encore une fois, le lien existant entre la mobilisation de particules et la propagation du front de séchage à travers la colonne.

On pourrait se demander si les perturbations du comportement sont dues à l’intensité importante de la pluie plutôt qu’à la cavité du bas de la colonne. Pour la colonne F, il est difficile de trancher vu que l’augmentation du flux d’eau à travers la colonne peut conduire à des instabilités de structure (des petits éboulements, un réarrangement brutal du réseau poral). Il est donc évident que si la colonne porte déjà des marques d’instabilité structurale. Celle-ci sera amplifiée avec des événements pluvieux intenses. Pour bien répondre à la question de l’influence de l’intensité de pluie sur le comportement de mobilisation en fonction de la pause, il faudrait reprendre le même travail qui a été fait sur F mais sur une autre colonne qui ne pose pas de problèmes de structure.

3.2.7. Pauses régulières et irrégulières (Colonne M)

Toutes les expériences menées sur les colonnes H, G, E et F ont été faites avec des pauses croissantes. Or il est probable que le comportement de mobilisation observé soit dû à l’ordre choisi par l’expérimentateur durant les essais (i.e. ordre croissant des pauses). Pour répondre à cette problématique, des pauses non croissantes ont été testées sur une nouvelle colonne, M. Il s’agit de deux types de pauses :

- Pauses régulières : il s’agit d’une succession de pauses de durées identiques. Trois durées régulières ont été testées (1, 2 et 7 jours) avec quatre répliques pour chacune.
- Pauses irrégulières : il s’agit d’une succession de pauses ayant des durées différentes mais testées sans aucun ordre particulier (d’une manière aléatoire).

L’ordre chronologique de l’ensemble des pauses testées sur la colonne M est le suivant : 164 h (4 infiltrations), 26 h, 2 h, 95 h, 50 h, 353 h, 48 h (4 infiltrations) et 23 h (4 infiltrations) (Figure III.3.25). Les conditions expérimentales de la colonne M sont les mêmes que celles des colonnes G et E.

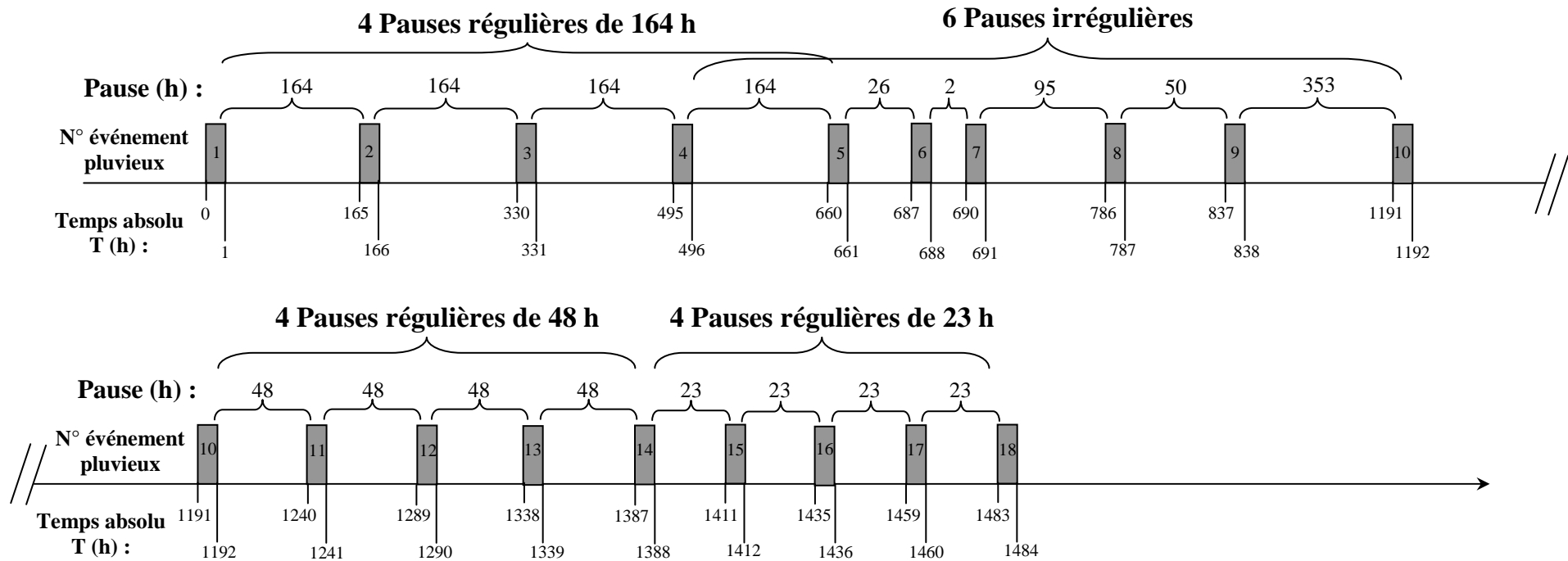


Figure III.3.25 : Historique des événements pluvieux et des pauses testées sur la colonne M. Le temps absolu marque la durée totale des essais sur la colonne. Chaque rectangle gris représente un créneau de pluie de durée 1 heure, d'intensité 20 mm/h et de force ionique 10^{-1} M. Le numéro contenu dans chaque rectangle gris représente l'ordre de l'événement pluvieux, le premier ayant commencé au temps absolu zéro. Ont été testées : une série de quatre pauses régulières de 164 h (événement pluvieux 1 à 5), six pauses irrégulières en une nouvelle série (événement pluvieux 4 à 10), suivie de quatre pauses régulières de 48 h (événement pluvieux 10 à 14), et une série de quatre pauses régulières de 23 h (événement pluvieux 14 à 18). La durée totale de cette expérience à la fin de l'événement 18 est de 1484 h (plus de 61 jours).

L'Annexe 2 présente les résultats expérimentaux suivants : les hydrogrammes correspondant à des pauses régulières de 7 jours (Annexe 2.9), les particulogrammes correspondant à des pauses régulières de 7 jours (Annexe 2.10), les courbes cumulées correspondant à des pauses régulières de 7 jours (Annexe 2.11), les hydrogrammes correspondant à des pauses régulières de 2 jours (Annexe 2.12), les particulogrammes correspondant à des pauses régulières de 2 jours (Annexe 2.13), les courbes cumulées correspondant à des pauses régulières de 2 jours (Annexe 2.14), les hydrogrammes correspondant à des pauses régulières de 1 jour (Annexe 2.15), les particulogrammes correspondant à des pauses régulières de 1 jour (Annexe 2.16), les courbes cumulées correspondant à des pauses régulières de 1 jour (Annexe 2.17), les hydrogrammes correspondant aux pauses irrégulières (Annexe 2.18), les particulogrammes correspondant aux pauses irrégulières (Annexe 2.19), les courbes cumulées correspondant aux pauses irrégulières (Annexe 2.20), et les paramètres de l'expression (1) pour tous les événements de la colonne M (Annexe 2.21).

Les résultats de la colonne M montrés en annexes sont en accord avec les observations déjà faites sur les autres colonnes. Dans ce paragraphe, seuls les résultats de mobilisation seront discutés. Pour des pauses régulières (1, 2 et 7 jours), la mobilisation est quasi stable avec une légère tendance à la baisse (Figure III.3.26a) et les courbes présentent chacune un niveau distinct de mobilisation. Ceci suggère que pour des durées différentes de pause, la mobilisation de particules est également différente.

Pour confirmer cette hypothèse, un essai de pauses irrégulières (succession de pauses de durées différentes testées sans aucun ordre particulier) a été conduit sur la colonne M (Figure III.3.26b). Le comportement 'montée-maximum-descente' est reproduit à nouveau avec un maximum aux alentours de 95 h de pause. Ce résultat montre que ce n'est pas l'ordre croissant des pauses qui conduit au comportement assez particulier de mobilisation déjà observé (montée-maximum-descente), mais que ce dernier est principalement lié à la durée de la pause quelque soit l'ordre dans lequel cette pause est imposée. La vue d'ensemble des pauses régulières et irrégulières testées sur la colonne M (Figure III.3.26c) donne une belle illustration de cette conclusion.

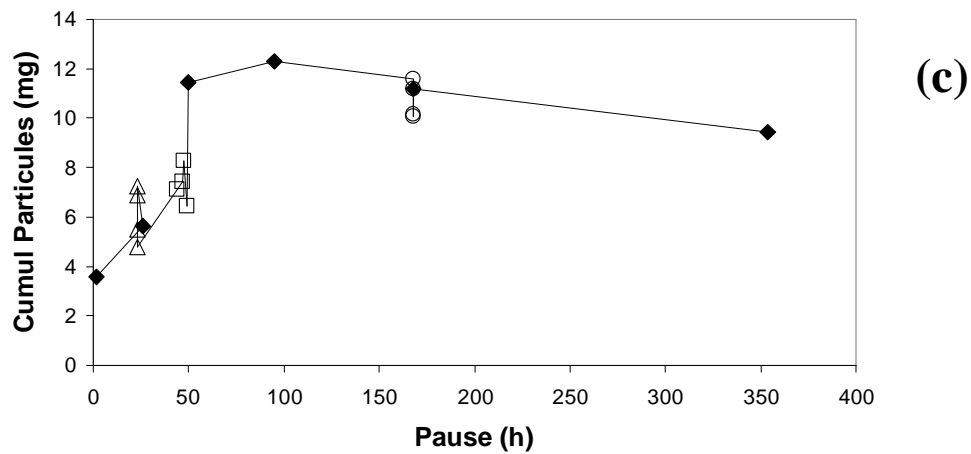
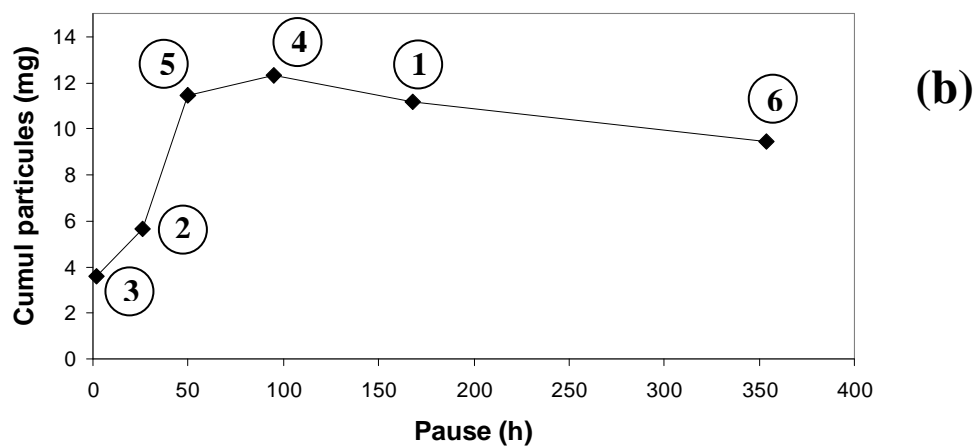
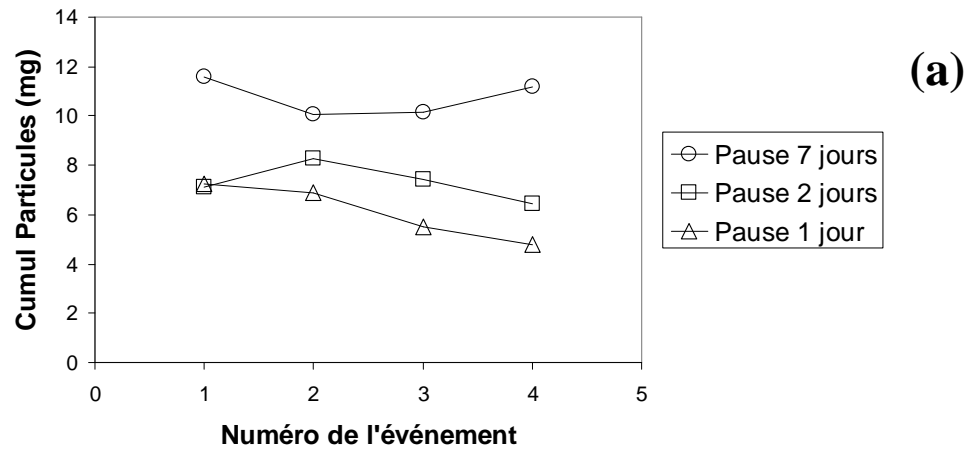


Figure III.3.26 : Pauses régulières et irrégulières sur la colonne M. (a) Pauses régulières de 1, 2 et 7 jours testées sur la colonne M avec quatre répliquations pour chacune. (b) Pauses aléatoires testées sans aucun ordre particulier suivant la séquence : 168, 26, 2, 95, 50 et 353.4 h. Les cercles numérotés indiquent l'ordre de l'infiltration. (c) Vue d'ensemble du cumul de particules drainées en fonction des pauses irrégulières (symboles pleins) et régulières (symboles vides).

3.2.8. Effet des pauses sur le sol de Versailles (Colonne L)

Tous les résultats présentés pour l'instant concernent des colonnes de sol d'Avignon. Afin de voir si la nature du sol a une influence sur le comportement de la mobilisation vis-à-vis de la durée de pause, 14 pauses croissantes (allant de 1 h à 670.7 h) ont été testées sur la colonne L (sol de Versailles) dans les mêmes conditions expérimentales que la colonne G (Figure III.3.27):

- Force ionique de la solution infiltrante $FI = 10^{-1}M$,
- Intensité de pluie $I = 20 \text{ mm/h}$,
- Créneau de pluie de durée 1 h.

Il faut rappeler que cette colonne a été conservée pendant plus que cinq ans au frigo (à 5°C) ce qui peut affecter en large mesure l'activité biologique et les changements structuraux du sol qui s'en suivent.

Le comportement hydrodynamique observé de la colonne L est différent non seulement par rapport au sol d'Avignon, mais aussi par rapport au comportement de ce même sol juste après le prélèvement (cinq ans auparavant) lors des expériences d'infiltration menées par Rousseau (2003). Pour des intensités de pluies de l'ordre de 20 mm/h, nous avons constaté la formation d'une lame d'eau en surface indiquant une diminution de la conductivité hydraulique, ce qui n'était pas le cas avec Rousseau (2003). En plus, pour des durées de pause importantes (au-delà de 168 h), nous avons constaté une détérioration de la forme des hydrogrammes (Figure III.3.28 i à l), alors que pour des pauses de plus courte durée, les hydrogrammes conservent une forme typique (Figure III.3.28 a à h).

Le comportement et de mobilisation de particules de la colonne L est lui aussi différent tant du sol d'Avignon comme du même sol de Versailles cinq ans auparavant. En effet, pour des mêmes créneaux de pluie, la quantité de particules lessivées par événement pluvieux est beaucoup plus faible (10 fois moins que ce qu'observait Rousseau (2003)). Ceci suggère que pendant cinq ans au frigo, des changements importants ont eu lieu au niveau des stocks de particules mobilisables : une cimentation, un attachement irréversible,... Cette diminution de mobilisation peut être observée sur l'ensemble des particulogrammes de la colonne L (Figure III.3.29) où le pic initial a une valeur faible par rapport à la queue. De plus, les perturbations hydrodynamiques observées au-delà de 168.2 h de pause se répercutent sur la mobilisation des particules, induisant également des perturbations de forme sur les particulogrammes (Figure III.3.29 i à l).

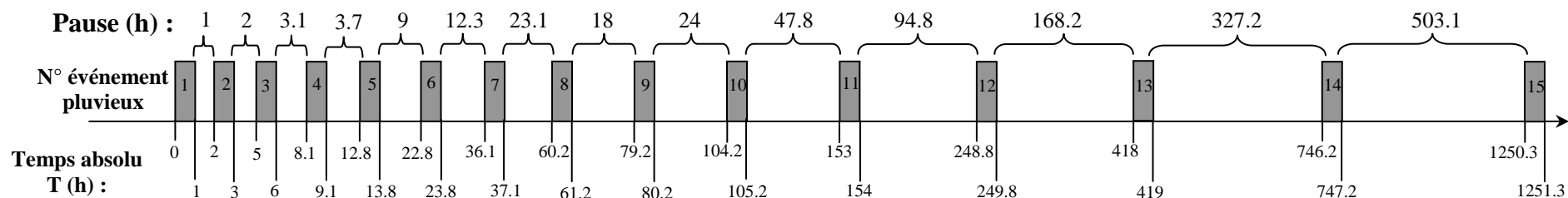


Figure III.3.27 : Historique des événements pluvieux et des pauses testées sur la colonne L. Le temps absolu marque la durée totale des essais sur la colonne. Chaque rectangle gris représente un créneau de pluie de durée 1 heure, d'intensité 20 mm/h et de force ionique 10^{-1} M. Le numéro contenu dans chaque rectangle gris représente l'ordre de l'événement pluvieux, le premier ayant commencé au temps absolu zéro. La série de pauses testées sur la colonne L comprend des pauses allant de 1 h à 503.1 h. La durée totale de cette expérience à la fin de l'événement 15 est de 1251.3 h (plus de 52 jours).

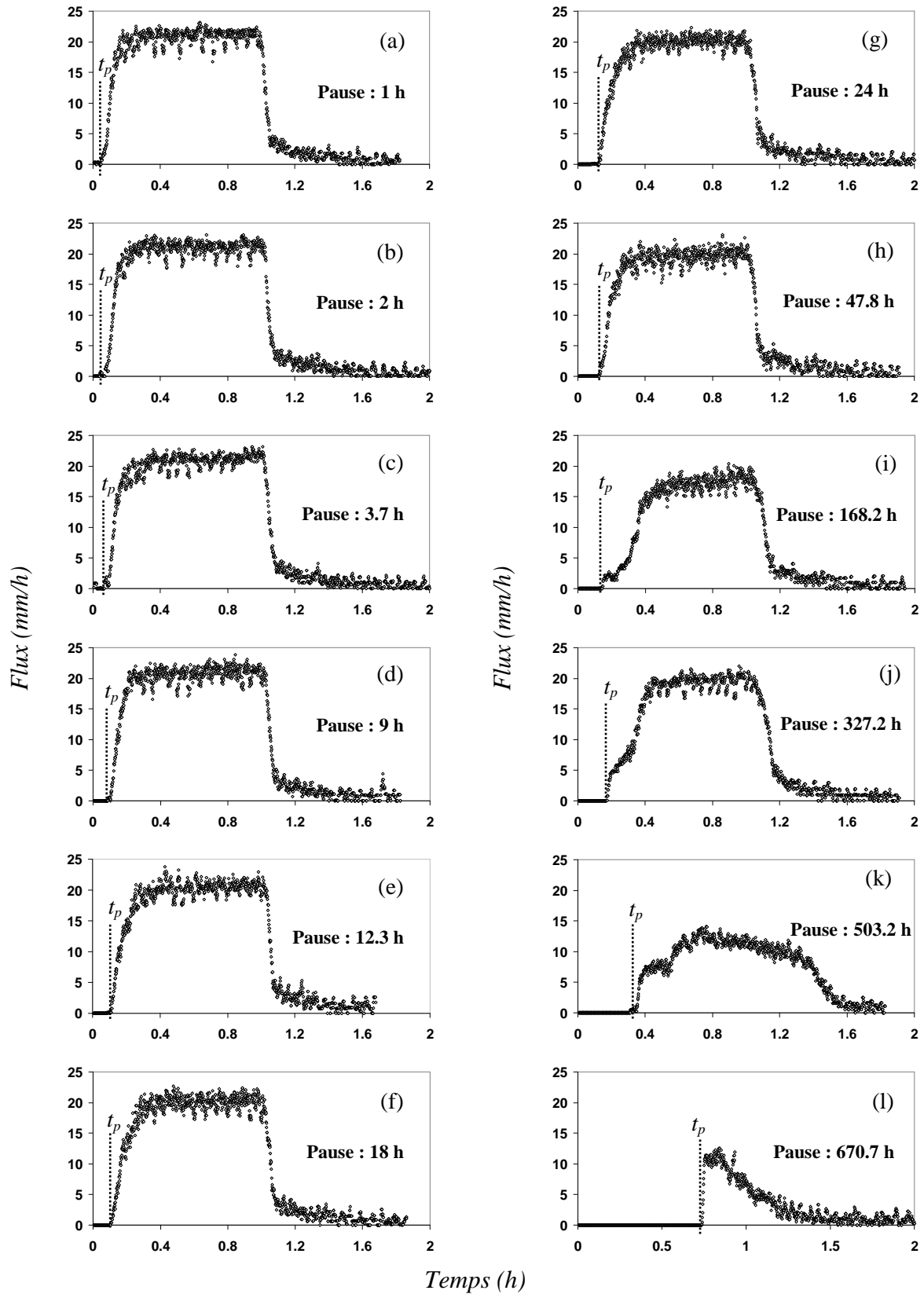


Figure III.3.28 : Ensemble des hydrogrammes de la colonne L pour des pauses allant de 1 h à 670.7 h. Le temps de percée t_p est compté à partir du début de l'irrigation et il correspond à la sortie de la première goutte d'eau (arrivée du front d'imbibition) en bas de la colonne.

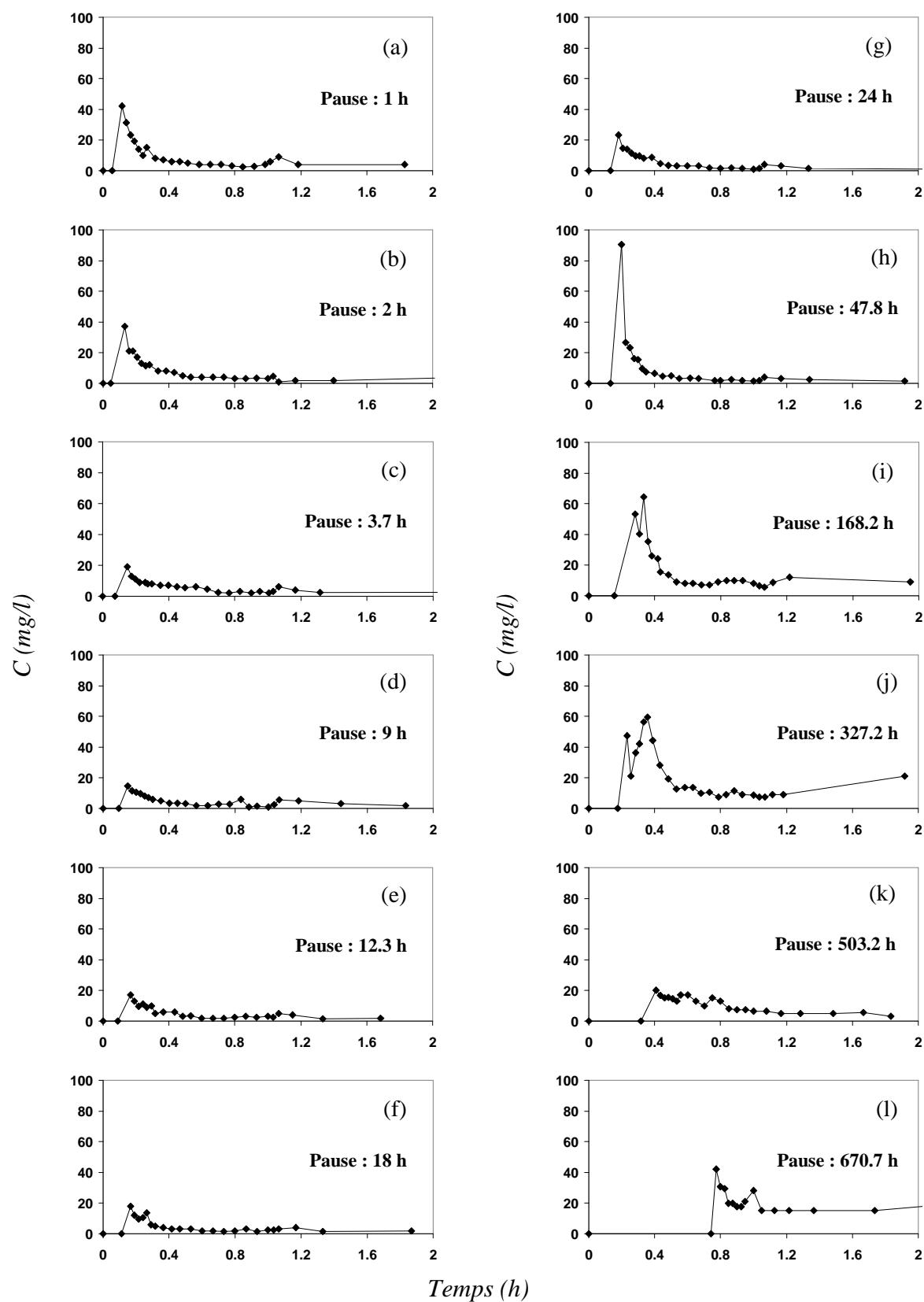


Figure III.3.29 : Ensemble des particulogrammes de la colonne L pour des pauses allant de 1 h à 670.7 h.

Les faibles valeurs des pics par rapport à la queue peuvent également être constatées en examinant les courbes cumulées (Figure III.3.30), où il n'apparaît plus de montée rapide exponentielle suivie d'une augmentation linéaire plus faible. Les deux parties, exponentielle et linéaire, sont plutôt confondues. Les contributions respectives du pic et de la queue du particulogramme sont alors du même ordre de grandeur et ne peuvent pas être clairement différenciées.

Les résultats de mobilisation en fonction de la pause montrent une légère différence par rapport à ceux observés sur le sol d'Avignon. En effet, la mobilisation entre une pause de 1 h et une pause de 18 h décroît pour le sol de Versailles. Ensuite, pour des pauses supérieures à 18 h, le comportement 'montée-maximum-descente' avec un maximum aux alentours de 327 h (Figure III.3.31a) est à nouveau observé. Quant à l'évolution du temps de percée en fonction de la pause (Figure III.3.31b), elle est comparable avec celle du Sol d'Avignon seulement jusqu'à une pause de l'ordre de 327 h. A partir de là, le temps de percée augmente à nouveau avec une pente assez forte probablement associée aux perturbations hydrodynamiques de la colonne L (pauses > 327 h).

Les résultats de la colonne L (Sol de Versailles) ne présentent pas exactement les mêmes observations faites sur les colonnes du sol d'Avignon. Certains problèmes comme les perturbations hydrodynamiques, ou les faibles quantités de particules mobilisées conduisent à quelques divergences de comportement entre les deux sols. Cependant, l'allure même partielle, du comportement de mobilisation vis-à-vis de la pause sur la colonne L est un résultat encourageant. Pour conclure réellement, les mêmes essais devraient être reconduits sur le même sol, mais cette fois-ci, sur une colonne fraîchement prélevée (et non une colonne conservée au frigo pendant plus que cinq ans). Il est possible qu'avec une colonne fraîchement prélevée, il y aurait moins de perturbations hydrodynamiques et plus de particules lessivés qu'avec la colonne L. Il serait aussi intéressant d'envisager des essais de pauses sur un troisième type de sol pour reconfirmer nos observations.

Bien que les problèmes rencontrés sur la colonne L n'aient pas permis de confirmer entièrement les observations faites sur le sol d'Avignon, ils portent quand même une certaine information : les différences observées parviennent après un long stockage de cette colonne au frigo (i.e. après une pause de durée extrêmement longue). Ceci est en accord avec nos résultats qui montrent que pour des durées de pause supérieures à quelques centaines d'heures, la mobilisation de particules devient de plus en plus faible. Que dire alors s'il s'agit de durées de pause supérieures à quelques dizaines de milliers d'heures (environ 43800 h).

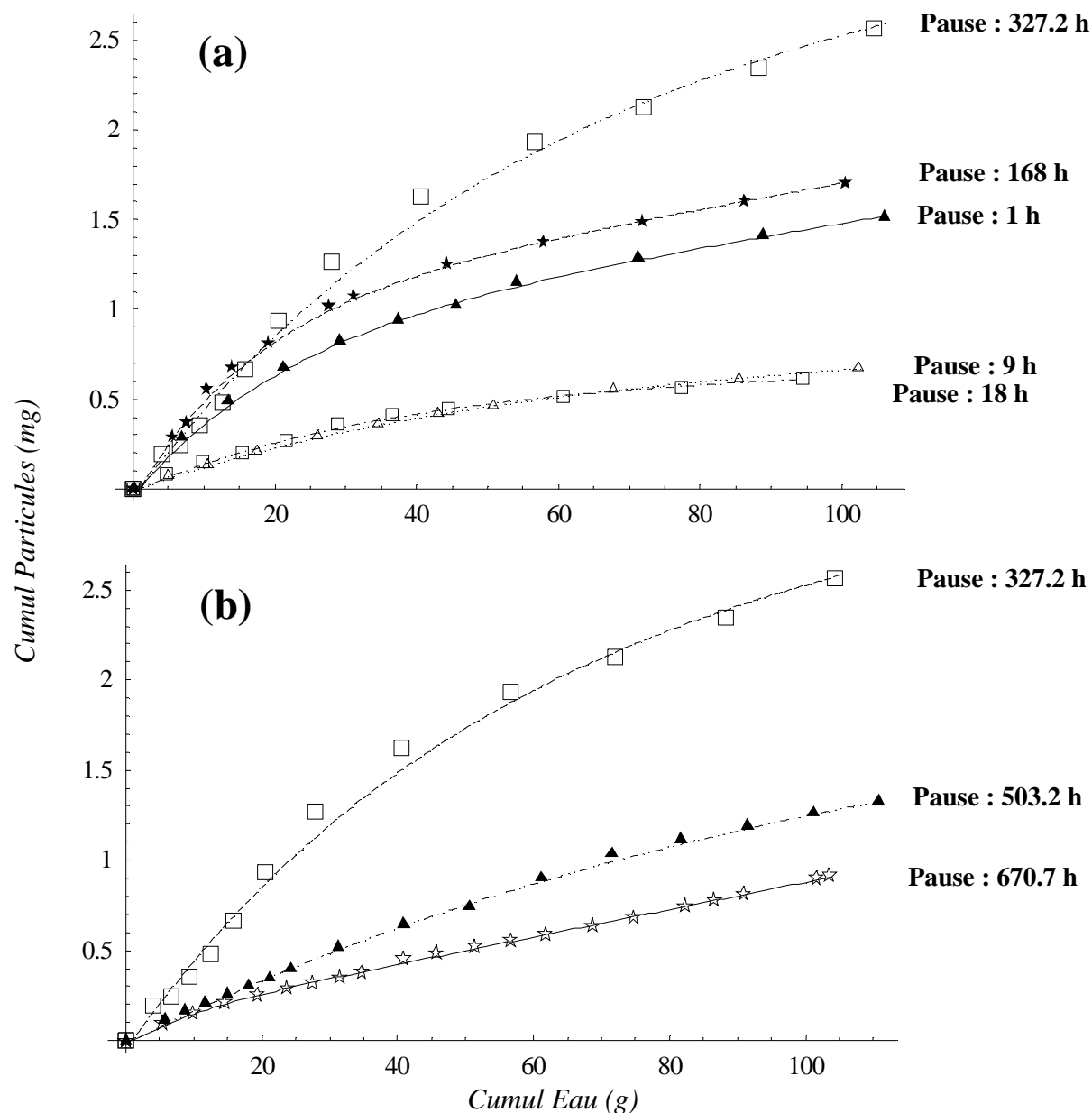


Figure III.3.30 : Ensemble des courbes cumulées pour différentes durées de pause testées sur la colonne L. (a) Durées de pause allant de 1 h à 327.2 h. (b) Durées de pauses allant de 327.2 h à 670.7 h. Les lignes pointillées sont les courbes simulées selon l'expression (1). L'erreur sur la masse cumulée de particules a été estimée en prenant en considération l'erreur de mesure sur la balance, l'erreur de mesure avec le spectrophotomètre, et l'erreur sur la régression linéaire d'étalonnage de celui-ci. La somme de toutes ces erreurs à la fin de l'événement pluvieux était inférieure à 0.5 mg.

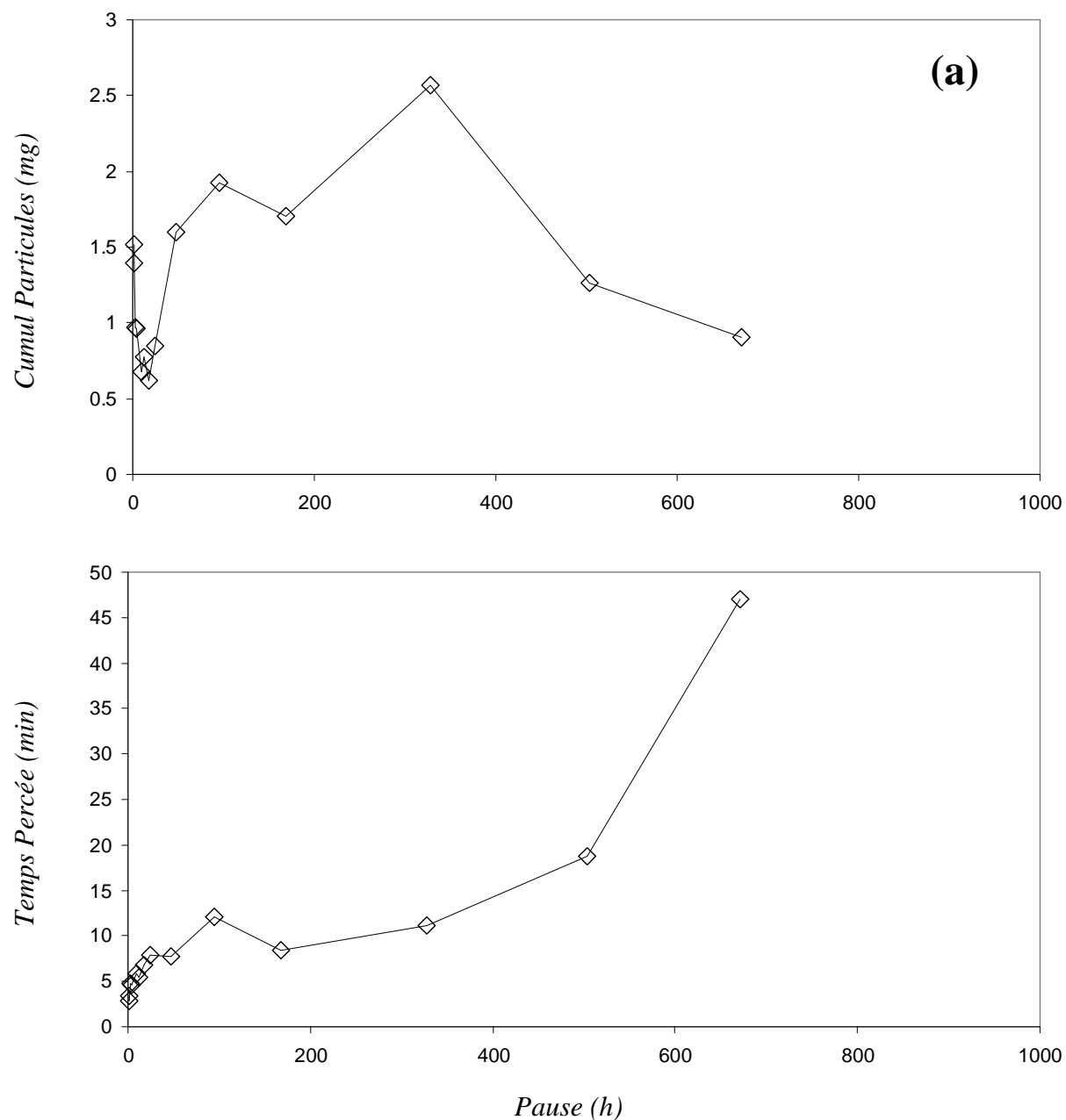


Figure III.3.31 : Colonne L. (a) Masse cumulée de particules lessivées par événement pluvieux en fonction de la durée de pause. Cette courbe est déduite de l'ensemble des courbes cumulées (Figure III.3.30) en prenant un même cumul d'eau en sortie de la colonne (~ 100 g) et en déduisant pour chaque pause le cumul de particules correspondant. (b) Temps de percée de chaque événement pluvieux pour les différentes pauses. Notons que l'intensité de pluie est la même (20 mm/h) pour toutes les événements.

3.3. Synthèse

Les résultats expérimentaux sur le sol d'Avignon montrent qu'il existe un comportement assez particulier de mobilisation de particules en fonction de la durée de pause : une augmentation de la mobilisation avec la durée de pause jusqu'à atteindre un maximum aux alentours de 200-300 h, suivie d'une diminution de mobilisation pour des pauses très grandes.

Ce comportement ne dépend pas de la force ionique de la solution infiltrante, et en moindre mesure de l'intensité de pluie (ce dernier point reste à vérifier). Bien que l'amplitude de la mobilisation semble être atténuée avec un nombre croissant d'événements pluvieux, le comportement de mobilisation continue à être reproductible. L'évolution du réseau poral après plusieurs événements successifs semble influencer le comportement de mobilisation en atténuant l'amplitude du maximum et en décalant sa position vers des pauses plus grandes. Ce comportement n'est pas une illusion résultant du couplage d'une cinétique de détachement de 1^{er} ordre durant la pause avec un ordre croissant des pauses. De même, le comportement de mobilisation n'est pas lié à l'ordre dans lequel les pauses sont testées : il est reproductible avec des pauses de durées différentes testées sans aucun ordre particulier.

En résumé, à chaque durée de pause correspond une mobilisation différente de particules. Ceci se fait suivant un comportement de mobilisation 'montée-maximum-descente' en fonction de la pause.

Les résultats expérimentaux de la colonne L (sol de Versailles) montrent que le comportement de mobilisation observé sur le sol d'Avignon se reproduit en partie. Les perturbations rencontrées sur la colonne L sont probablement le résultat de la pause très longue (cinq ans et demi au frigo) qui a affecté la structure de la colonne ainsi que le stock de particules mobilisables.

L'ensemble de nos données expérimentales montre que la quantité de particules lessivées durant un événement pluvieux ne résulte pas uniquement de l'événement lui-même : elle est fortement influencée par la durée de la pause précédente. Ici réside donc la nouveauté de notre travail par rapport à la quasi-totalité des études traitant sur la mobilisation et le transport des particules. Pour la grande majorité des études réalisées, les particules lessivées durant un événement pluvieux étaient attribuées à des mécanismes de mobilisation opérant uniquement pendant l'événement lui-même, sans considérer de mécanismes de mobilisation agissant pendant la période d'interruption de la pluie entre deux événements.

L'interprétation donnée dans notre travail vise à inclure la prise en compte de l'histoire du sol dans l'étude des mécanismes de mobilisation et de transport de particules.

Chapitre 4 : Processus de mobilisation éventuels pendant la pause, interprétations et conséquences

4.1. Introduction

L'ensemble des résultats du chapitre 3 montre que la quantité de particules lessivées pendant un événement pluvieux ne peut pas être attribuée aux mécanismes de mobilisation opérant uniquement pendant l'événement pluvieux lui-même. Il existe, en effet, d'autres mécanismes qui opèrent pendant la pause et qui influencent fortement la mobilisation ultérieure de particules (durant l'événement suivant).

Dans ce chapitre, nous allons discuter les éventuels processus physiques qui pourraient expliquer le comportement de mobilisation de particules en fonction de la pause. Il s'agit d'expliquer deux tendances contradictoires : (i) d'une part, une augmentation jusqu'à un maximum de la quantité de particules lessivées avec des pauses courtes, puis, (ii) d'autre part, la diminution de cette même quantité à partir du maximum pour des pauses de plus en plus grandes. La pause en elle-même n'est pas un paramètre physique qui nous permet de caractériser et de comprendre les facteurs de mobilisation. La durée de pause est plutôt un indice au-delà duquel il faut chercher les vrais processus physiques qui opèrent pendant la pause et qui mènent à la fois, soit vers une montée, soit vers une descente de la quantité de particules lessivées par événement pluvieux.

Il faut mentionner que l'interprétation des résultats expérimentaux donnés ci-dessous dans cette partie, permettent, tout au plus (dans le cadre de cette thèse) de proposer des hypothèses de mécanismes de mobilisation. Bien que certaines hypothèses semblent plus logiques que d'autres, elles nécessitent d'être confirmées par des travaux futurs.

4.2. Interprétation de la forme typique des particulogrammes

Tous les particulogrammes possèdent la même forme typique : une grande concentration initiale (pic) associée au passage du front d'imbibition suivi d'une diminution vers un niveau bas et constant (queue). A part quelques incidents de mobilisation (pics secondaires), la prolongation de l'événement pluvieux ne va pas mener à une augmentation de la concentration qui va continuer à baisser lentement vers des niveaux de plus en plus bas. Ceci suggère que l'eau ne transporte que les particules issues d'une zone de la matrice voisine (i.e. entourant) du macropore (Figure III.4.1) appelée "croûte du macropore". Autrement dit, la

mobilisation agit sur une certaine distance à partir du macropore (rayon d'action) limitée à la croûte de celui-ci, bien que cette limite intérieure soit mal définie. La mobilisation ne touche pas, ou très peu, les zones intérieures ou profondes de la matrice situées loin du macropore. Donc, le rayon d'action varie avec le temps pendant l'événement pluvieux. L'état initial de cette zone fixe le stock de particules qui pourront être mobilisées.

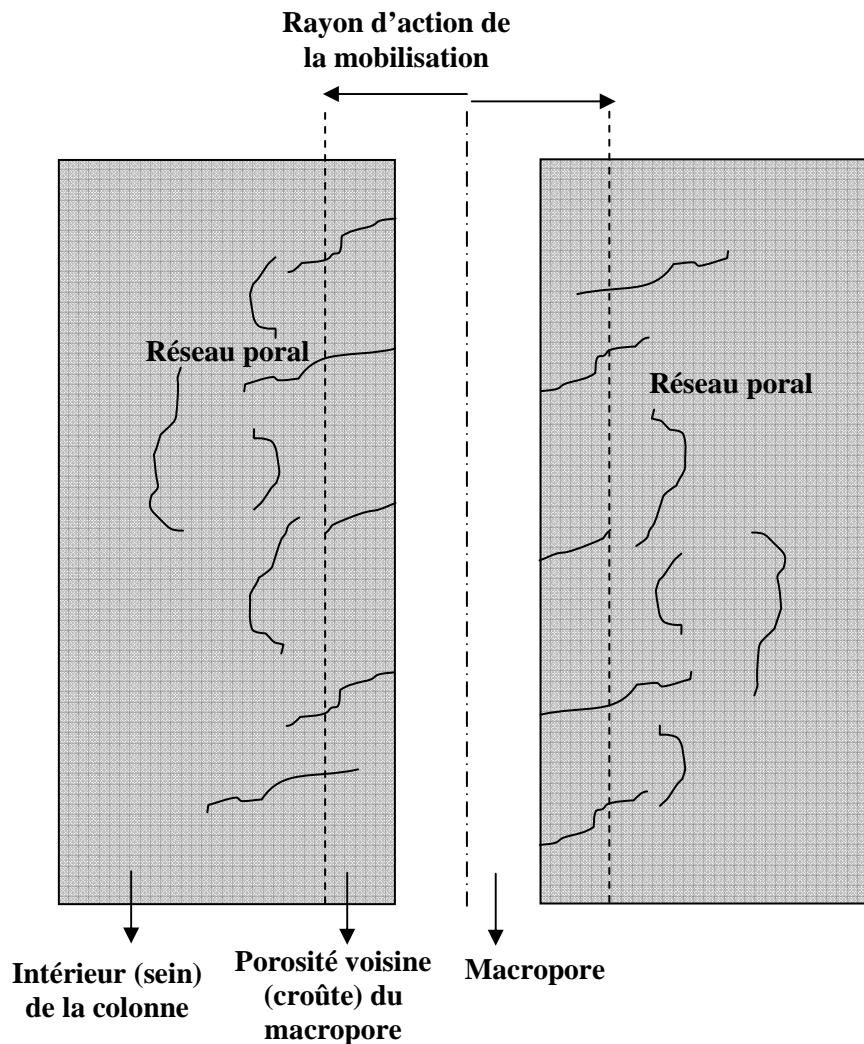


Figure III.4.1 : Représentation schématique d'un élément du sol montrant un macropore et sa porosité voisine (croûte). Le rayon d'action de la mobilisation est limité à une certaine profondeur dans la matrice (i.e. la porosité voisine du macropore) et ne peut accéder aux zones plus profondes vers l'intérieur (sein) de la colonne.

Evidemment, il n'est pas exclu que certaines particules soient mobilisées au-delà de la porosité voisine du macropore. Cependant, ces particules seront difficilement atteintes par l'écoulement de l'eau pour être transportées ensuite vers les macropores. Par conséquent, ce

sont les particules mobilisées dans l'entourage proche du macropore qui auront plus de chance d'être transportées par l'écoulement. Le particulogramme obtenu lors d'un événement pluvieux représente alors une image du "nettoyage" de cette zone du sol.

Cependant, il faut remarquer dans les particulogrammes que la prolongation de l'événement pluvieux ne produit jamais un nouveau pic de concentration (sauf s'il s'agit de pics secondaires accidentels dont le nombre est minime par rapport à l'ensemble des événements). Après le passage du pic, la concentration en particules se maintient à un niveau constant avec une légère tendance à la baisse. Par contre, l'interruption de l'événement pluvieux pendant une certaine période (pause) et sa reprise ultérieure produit un nouveau pic initial de concentration. La question qui se pose est la suivante : pourquoi la reprise de la pluie après interruption conduit-elle à un nouveau pic, et est-ce la pause à elle seule la responsable de ce pic et de son amplitude ?

Récemment, Zhang et al. (2007) ont montré qu'un volume d'eau donné peut mobiliser plus de particules quand des interruptions d'irrigation sont faites, en comparaison avec une irrigation continue. L'excès de mobilisation est localisé dans les pics de concentration associés aux phases transitoires d'écoulement. Cette constatation a poussé Zhang et al. (2007) à postuler que ce sont les interfaces eau-air (durant les phases transitoires) qui sont responsables des pics de concentration. Une telle hypothèse est en accord avec nos observations expérimentales. Nous pouvons même ajouter, à l'hypothèse sur les interfaces eau-air, l'accélération du flux comme cause d'arrachement de particules pendant la phase transitoire, et dire que le pic résulte de l'action des forces transitoires associées au passage du front d'imbibition. Cependant, nos résultats ont montré que la durée de la pause a une influence majeure sur l'amplitude du pic. Rappelons que nos conditions expérimentales (intensité et force ionique de la pluie) étaient maintenues constantes pour une même colonne de sol, ce qui implique que l'action des forces transitoires est quasiment la même pour tous les événements pluvieux. Par conséquent, l'action de ces forces transitoires pendant l'écoulement n'est pas capable à elle seule d'expliquer l'excès de mobilisation (pic), étant donné que sa valeur est variable avec le temps de pause. Autrement dit, une même action transitoire est capable de mobiliser plus ou moins de particules suivant la durée de la pause précédente. Nous pouvons donc affiner le postulat de Zhuang et al. (2007) en disant :

Si les forces transitoires sont responsables du pic initial du particulogramme, elles ne contrôlent pas son amplitude; celle-ci étant principalement influencée par la durée de la pause (i.e. par ce qui se passe pendant la période d'interruption de pluie).

Reste à interpréter l'autre partie du particulogramme : la queue. Celle-ci garde un niveau de concentration constant tant que l'événement pluvieux persiste. En effet, les résultats des courbes cumulées (chapitre 3) ont montré que la contribution de la queue à l'ensemble des

particules lessivées (par événement pluvieux) était presque la même pour les différentes durées de pauses testées sur une même colonne. Ceci était confirmé par le parallélisme qui existe entre les différentes parties linéaires (contribution de la queue) des courbes cumulées (Figure III.3.7 et Figure III.3.14). Ainsi, il paraît qu'il existe un niveau de mobilisation de base correspondant à la queue, qui est commun à tous les événements pluvieux et qui a une concentration presque stable. Il est fort probable que cette stabilité soit liée aux mêmes conditions expérimentales (intensité et force ionique de la pluie) tout le long des différents événements. Vu que les variations de la contribution de la queue en fonction de la pause ne sont pas aussi marquées et significatives que celles du pic, il serait logique de supposer que :

- *Le pic, très sensible à la pause, représente les particules mobilisées ou fragilisées pendant la pause.*
- *La queue, moins sensible à la pause, représente les particules mobilisées pendant l'événement pluvieux lui-même soit par détachement physico-chimique soit par l'action des forces hydrodynamiques.*

Par conséquent, chaque particulogramme peut être divisé en deux types de contribution (Figure III.4.2) :

- Une contribution de base qui se produit quelque soit la durée de pause. C'est une contribution liée aux conditions expérimentales de l'événement pluvieux. Elle est traduite par une queue stable due au détachement physico-chimique et/ou hydrodynamique ainsi que par un éventuel petit pic qui représente la quantité (seuil) minimale de mobilisation due à l'action des forces transitoires indépendamment de la durée de pause.
- Une contribution variable qui dépend de la durée de la pause. Elle est principalement due à l'action des forces transitoires et se traduit par la variabilité de l'amplitude du pic initial en fonction de la pause. Il s'agit du lessivage des particules qui ont été plus ou moins mobilisées ou fragilisées pendant la pause.

Remarque : une nouvelle série d'expériences est en cours à l'INRA d'Avignon afin de vérifier ces hypothèses. Il s'agit, tout en gardant des durées de pause constantes, de faire varier les conditions expérimentales maintenues constantes dans ce travail, à savoir : la force ionique de la solution infiltrante, l'intensité de pluie, et la durée d'alimentation.

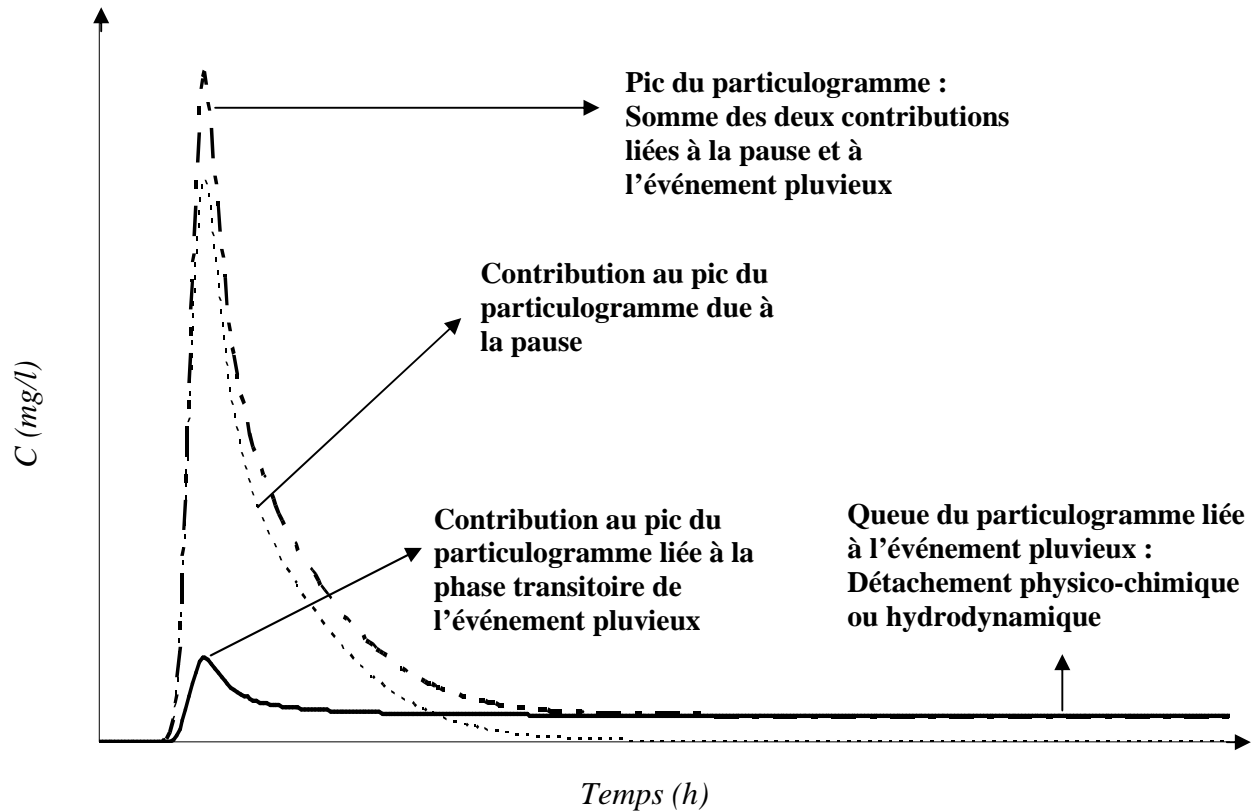


Figure III.4.2 : Deux types de contributions sont à l'origine d'un particulogramme : d'une part une contribution presque constante indépendante de la durée de pause qui concerne la queue ainsi qu'un éventuel petit pic, d'autre part, une contribution variable dépendante de la pause qui concerne surtout le pic initial.

4.3. Scénarios de mobilisation durant la pause

Dans le paragraphe précédent, nous avons émis l'hypothèse de deux types de contributions à la formation du particulogramme. Il faut maintenant distinguer entre leurs différentes origines : (i) d'une part les particules dont la mobilisation est directement liée à l'événement pluvieux lui-même, et (ii) d'autre part les particules dont la mobilisation est directement liée à la pause. Dans ce paragraphe, nous allons nous intéresser au point (ii) en explorant les différents mécanismes susceptibles de se développer pendant la pause.

Dans ce cadre, deux schémas peuvent se présenter (Figure III.4.3) :

- Pendant la pause, les liaisons entre les particules et la matrice solide sont fragilisées. Ensuite pendant l'événement pluvieux, les particules fragilisées sont détachées puis transportées.

- Pendant la pause, des particules sont détachées et passent dans la phase liquide immobile. Ensuite pendant l'événement pluvieux, cette eau est mise en mouvement, les particules détachées sont transportées.

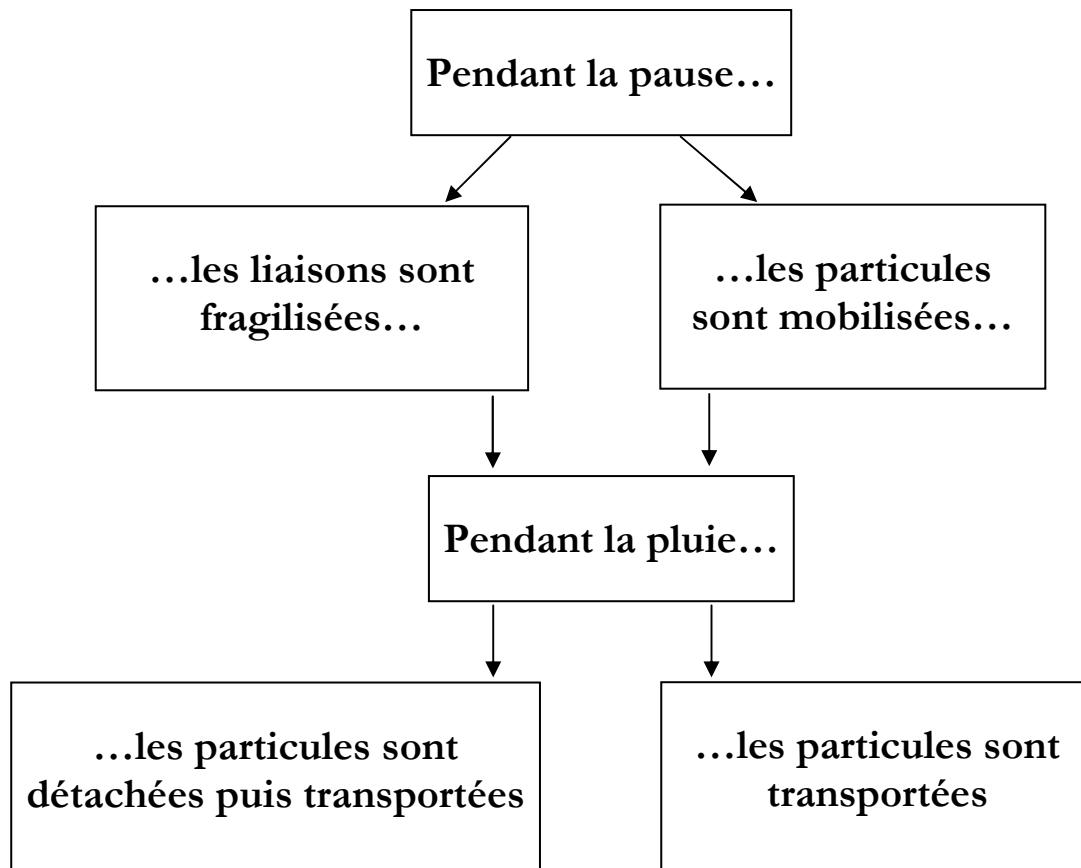


Figure III.4.3 : Deux scénarios de mobilisation pendant la pause.

Par ailleurs, les mécanismes qui agissent pendant la pause doivent expliquer l'augmentation et la diminution de la mobilisation (montée et descente) pour des pauses toujours croissantes. Il n'est pas évident de trouver un seul mécanisme qui puisse expliquer à la fois la montée et la descente de mobilisation. Cependant, certains mécanismes peuvent être responsables de la montée, d'autres de la descente.

4.3.1. Mobilisation croissante durant la pause (montée)

Quand un solide est en contact avec un liquide, des réactions chimiques transforment une partie (ou la totalité) du solide vers la phase liquide : effet de dissolution. Le degré de

dissolution dépend de la solubilité du solide. Si le matériau dissous dépasse une certaine concentration, une partie de la phase en solution va précipiter. La dissolution peut concerner des éléments fréquents dans les sols naturels comme la silice, la calcite et la dolomite. La dissolution de la silice amorphe peut par exemple contribuer à des concentrations de l'ordre de 60 mg/l au bout de 10 jours (Figure III.4.4).

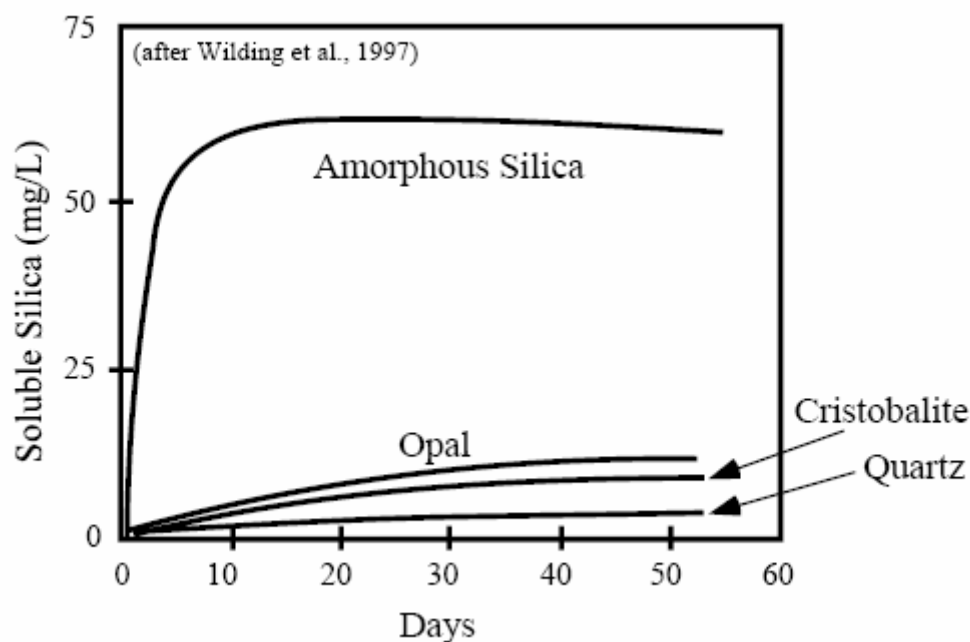


Figure III.4.4 : Dissolution de la silice avec le temps (d'après Wilding et al., 1997)

Afin d'expliquer la montée de la mobilisation durant la pause, Schelde et al. (2002) ont proposé l'hypothèse de diffusion de particules selon le schéma suivant : pendant la pause, la concentration de particules dans l'eau immobile augmente suivant une diffusion à partir de la croûte du macropore vers l'eau immobile. Ensuite, durant l'événement pluvieux, le front d'imbibition récupère les particules accumulées durant la pause suivant une diffusion à partir de l'eau immobile vers l'eau mobile. Cette récupération se traduit par le pic initial du particulogramme. Ainsi, durant l'événement pluvieux, la concentration de particules dans l'eau immobile est remise à zéro : elle augmentera à nouveau lors de la pause suivante. Il faut noter que l'augmentation de la concentration de particules dans l'eau immobile n'est pas infinie, et qu'elle atteindra, au bout d'une certaine durée, une limite de saturation. Ce processus d'augmentation est interrompu par le passage d'un front d'imbibition (un nouvel événement pluvieux qui interrompt la pause).

Si le schéma de Schelde et al. (2002) est capable de décrire la montée de la mobilisation, il n'arrive pas à décrire la descente. Celle-ci n'était même pas observée dans les expériences de Schelde et al. (2002) vu la limitation des durées de pauses testées : seulement trois durées de pauses ont été testées (une demi-heure, un jour, et sept jours) avec la plus grande durée ne dépassant pas une semaine. A partir de là, il faut trouver un autre mécanisme pour expliquer la descente de la mobilisation pour des pauses de très longues durées.

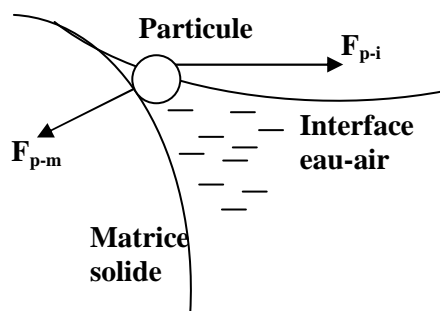
Comme il a été dit ci-dessus, la dissolution et la diffusion conduisent à un détachement des particules de la matrice solide vers l'eau stagnante (ou immobile). Cependant, il est possible que durant la pause les particules restent liées à la matrice mais que cette liaison soit fragilisée, favorisant leur détachement et leur transport lors de la reprise de la pluie. Par exemple, la dilution de l'argile dans les zones solides en contact avec l'eau stagnante peut conduire à un affaiblissement des liaisons existantes entre l'argile et les particules voisines (i.e. décimentation).

Les forces capillaires se développent dans le milieu poreux surtout durant la phase de drainage. L'eau cède de plus en plus la place à la phase gazeuse multipliant ainsi le nombre des interfaces eau-air. La capillarité peut jouer des rôles contradictoires : d'une part elle peut contribuer à la cohésion du milieu à travers les ponts capillaires (e. g. châteaux de sable), d'autre part elle peut éclater le tissu du milieu à travers les stress différentiels (e. g. « cracks » lors du séchage des gels). Contrairement au sable de mer (milieu assez homogène composé d'éléments indéformables), nos colonnes de sol représentent un milieu assez complexe (hétérogène, anisotrope et déformable) qui pourrait être le siège de ces phénomènes contradictoires. Dans ce paragraphe, nous allons traiter les effets de la capillarité qui nous semblent être responsables de l'augmentation de la mobilisation de particules pendant la pause.

Nous pouvons distinguer trois mécanismes qui accompagnent le développement des forces capillaires dans le milieu :

- Adsorption à l'interface eau-air. Au début du séchage du milieu, les interfaces eau-air vont se développer (se multiplier). Avec l'avancement du séchage, les interfaces vont se déplacer conduisant à la création de ponts capillaires qui se rétrécissent au fur et à mesure que la saturation du milieu diminue. Supposons qu'au cours de son déplacement, l'interface eau-air vient se positionner autour d'une particule liée à la matrice solide (Figure III.4.5a). Si la force qui relie la particule à la matrice (F_{p-m}) est plus faible que la force d'attachement (F_{p-i}) qu'exerce l'interface eau-air sur la particule, la particule sera détachée de la matrice et attrapée (adsorbée) par l'interface. C'est une sorte d'épluchage des particules de tailles plus ou moins petites et qui sont faiblement liées à la surface de la matrice solide.

- « Cracking ». Il s'agit d'une dislocation (déstabilisation) d'une zone plus ou moins grande de la matrice solide située entre deux pores de tailles assez différentes. C'est le résultat des stress différentiels qui se développent dans cette zone inter-porale suite à la vidange différentielle de la porosité (cf. Figure I.4). Cette zone fragilisée sera plus vulnérable à l'action du front d'imbibition qui va y détacher des particules de taille plus ou moins grande. Si la fragilisation est importante, le détachement peut concerner des agglomérats de particules.

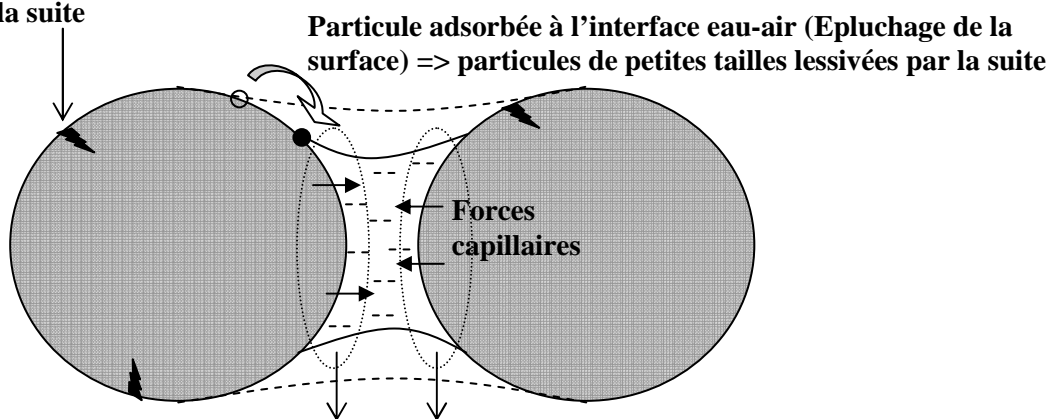


Adsorption à l'interface eau-air :

Si $F_{p-i} > F_{p-m} \Rightarrow$ la particule sera détachée et adsorbée à l'interface eau-air

(a)

« Crack » \Rightarrow particules de grosses tailles lessivées par la suite



(b)

Zones ramollies à cause de l'action des forces capillaires
 \Rightarrow agglomérats de particules lessivées par la suite

Figure III.4.5 : Mobilisation de particules pendant la pause due à l'action des forces capillaires. (a) Adsorption à l'interface eau-air (épluchage). F_{p-i} la force liant la particule à l'interface eau-air et F_{p-m} la force liant la particule à la matrice solide. (b) Les trois mécanismes principaux responsables de la fragilisation et du détachement de particules durant la pause : (i) l'adsorption à l'interface eau-air qui se déplace (rétrécit) lors du séchage du milieu, (ii) le « cracking » qui résulte des stress différentiels lors du vidage des pores (première partie, paragraphe 4.3), et (iii) ramollissement des zones solides en contact avec le ménisque suite à l'action des forces capillaires.

- Ramollissement de la matrice solide : les forces capillaires qui se développent à l'intérieur et à la surface des ménisques exercent (en général) une attraction entre les agglomérats. Prenons l'exemple d'un pont capillaire entre deux sphères (Figure III.4.5b). Si les deux sphères sont libres, elles vont se rapprocher l'une de l'autre jusqu'à ce qu'elles se touchent et se collent : c'est le phénomène de la coalescence (cf. Figure I.3). Par contre, si les deux sphères sont plus ancrées dans leur entourage, l'attraction va principalement s'exercer sur les zones solides en contact avec le ménisque. Ces zones vont subir une sorte de ramollissement (i.e. affaiblissement de leur liaison avec le reste de la sphère) et seront par suite plus vulnérables à l'action du front d'imbibition. Suivant l'état de ramollissement, le détachement peut concerner des agglomérats de particules plus ou moins importants.

L'ensemble des trois mécanismes ci-dessus est montré en Figure III.4.5b.

Des observations microscopiques préliminaires des particules lessivées pour des pauses allant de 2 à 288 h ont été faites sur les 5 ml d'effluents juste après la percée (pic du particulogramme) ainsi que sur les 5 ml d'effluent juste avant l'arrêt de la pluie (queue du particulogramme). Les résultats ont montré que les particules de la queue sont essentiellement de petite taille ($< 10 \mu\text{m}$) et monolithiques, tandis que les particules du pic sont essentiellement de plus grande taille ($> 10 \mu\text{m}$) et composites (i.e. agglomérats de particules de micro taille). Pour des pauses croissantes, nous observons de plus en plus de gros agglomérats de particules avec une taille maximale de plus en plus croissante (Figure III.4.6). Les agglomérats de particules (grosses tailles) résultent probablement du « cracking » ou des zones de la matrice solide qui sont ramollies sous l'action des forces capillaires et qui peuvent se détacher par gros morceaux. Alors que les petites particules peuvent résulter de plusieurs mécanismes, y compris la capillarité, via l'adsorption des particules fines à l'interface eau-air. Ces observations favorisent la préférence de la capillarité, face aux autres mécanismes de mobilisation, pour expliquer la phase croissante de mobilisation pendant la pause.

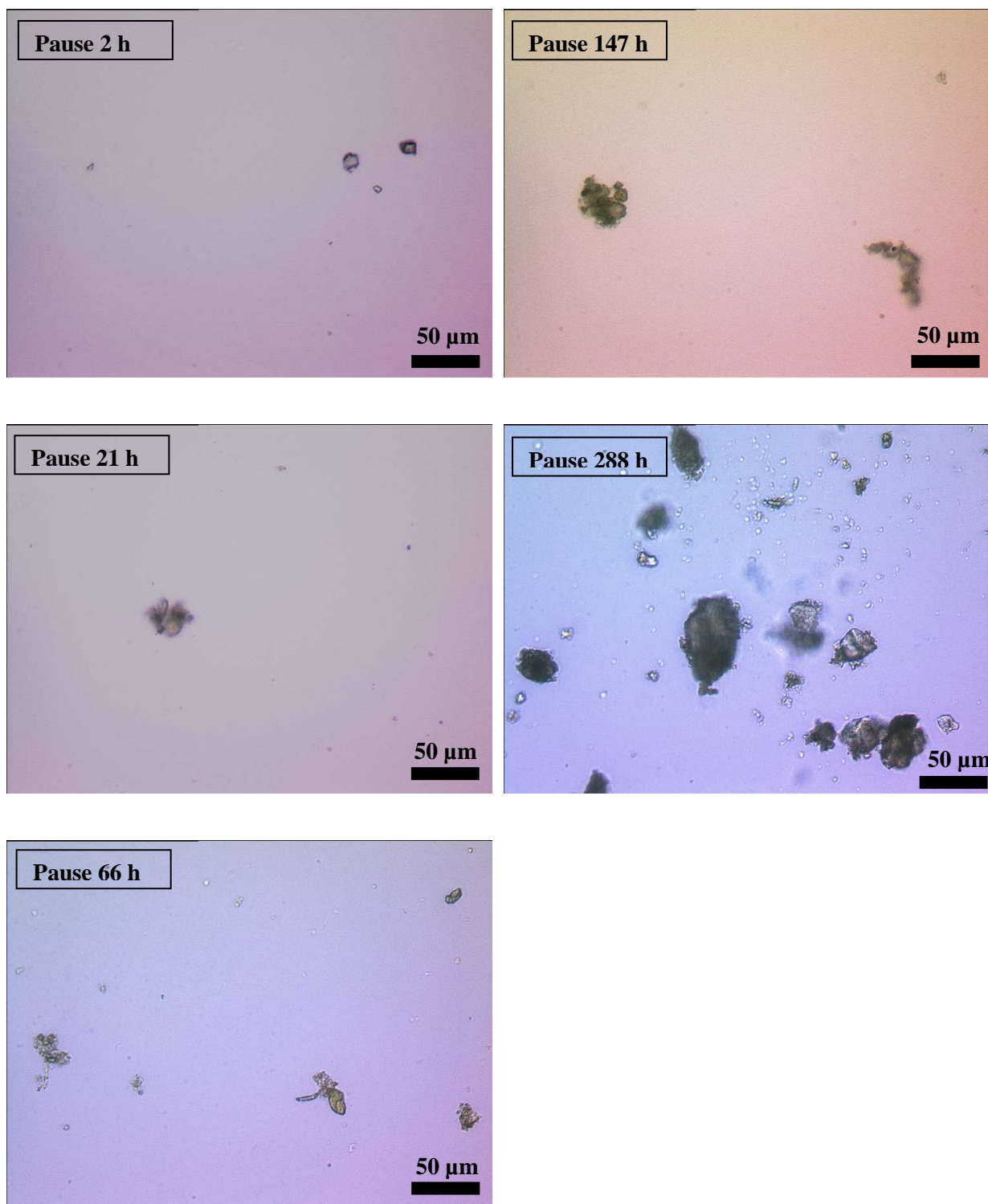


Figure III.4.6 : Images microscopiques des effluents de la colonne H collectés durant les quelques minutes qui suivent la percée (pic du particulogramme), et ceci pour cinq événement pluvieux ayant lieu après les durées de pauses suivantes : 2, 21, 66, 147 et 288 heures. Les images montrent les plus grosses particules observées pour une expérience donnée. La fréquence d'observation de gros agglomérats de particules, ainsi que la taille des plus grosses particules, augmente avec la durée de pause. La barre d'échelle est de 50 µm.

4.3.2. Mobilisation décroissante durant la pause (descente)

Plusieurs mécanismes peuvent être évoqués pour expliquer la diminution de la mobilisation de particules avec le temps de pause. Tous peuvent avoir lieu dans nos colonnes de sol et il est difficile au premier abord de privilégier une piste par rapport à une autre.

Le vieillissement (« aging ») conduit à un renforcement (cimentation) des liaisons entre les particules et rend leur mobilisation de plus en plus difficile avec le temps. L'hypothèse à la base de ce mécanisme est que les fractions solubles du sol (e. g. carbonates, argiles...) vont se dissoudre lorsque le milieu est saturé. Ensuite, ces solutés vont se déposer sur des zones de contact entre particules pour renforcer les liaisons existantes. Les particules dissoutes peuvent aussi se réarranger avec le séchage pour se cristalliser et former des ponts rigides entre les agrégats (Figure III.4.7). L'activité biologique peut aussi jouer le rôle de cimentation. Certaines bactéries comme *Bacillus pasteurii* et *Sporosarcina ureae* produisent comme excrément l'ammoniac. Celui-ci réagit avec l'eau de la solution pour former l'hydroxyde d'ammonium qui, à son tour, provoque la précipitation des carbonates.

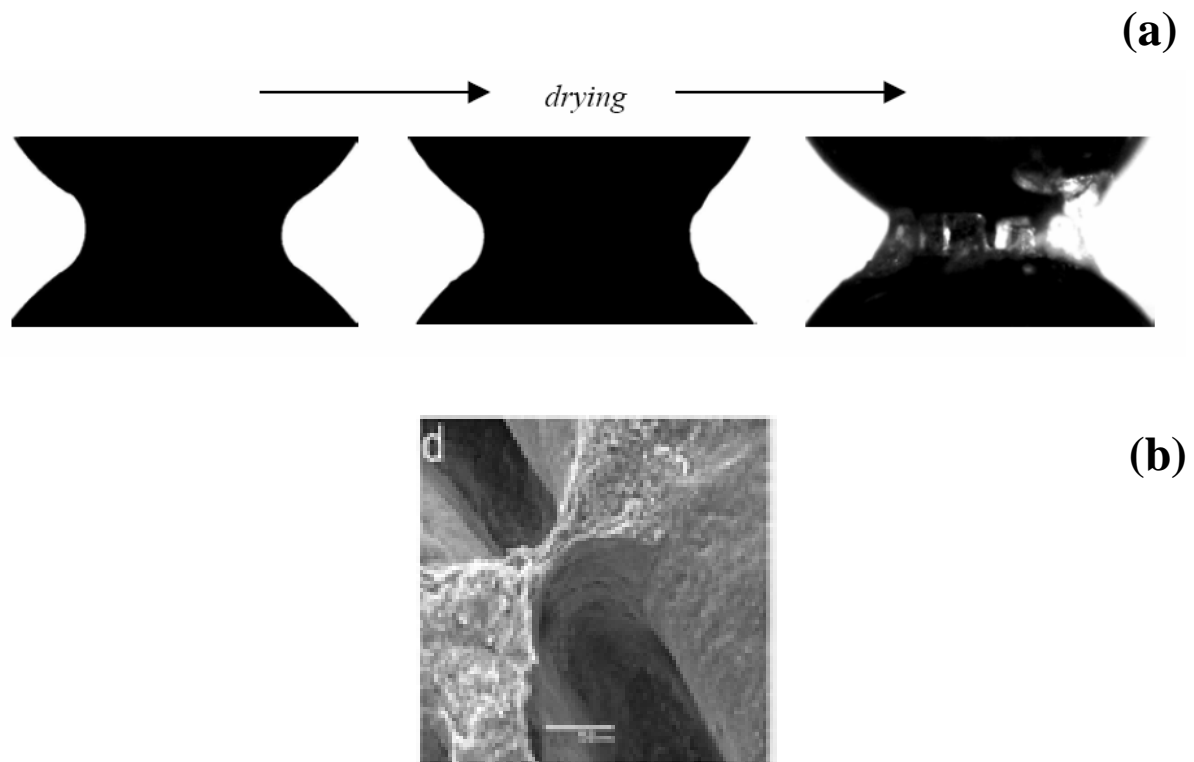


Figure III.4.7 : Formation de ponts rigides qui conduisent à la cimentation des agrégats. (a) Ponts de sels qui se forment par précipitation lors du séchage de l'eau salée entre les deux billes de verre (d'après Santamarina, 2001). (b) Image microscopique de ponts d'argiles entre deux grains de sable (d'après Gélard, 2005).

La diminution de la teneur en eau du milieu peut conduire à une diminution de la quantité de particules détachées (dissoutes). En effet, quand le volume d'eau d'une flaque stagnante diminue, la concentration des particules dissoutes augmente jusqu'à atteindre le niveau de saturation à partir duquel l'excès de particules va se précipiter. Ainsi, au fur et à mesure que la flaque d'eau se rétrécit, la masse globale de particules dissoutes va diminuer jusqu'à devenir zéro quand la flaque disparaît et que toutes les particules qui y étaient présentes sont précipitées.

Les sites préférentiels, comme l'adsorption préférentielle des particules à l'interface eau-air-solide, favorisent le contact inter particules (cf. Figure I.2). La multiplication des voisins proches consolide les liaisons et peut conduire à un attachement irréversible.

De manière opposée à ce qui a été évoqué dans le paragraphe précédent, les forces capillaires peuvent diminuer la mobilisation de particules en les consolidant (cf. la coalescence (Figure I.3)) et en renforçant leurs liaisons avec la matrice (Filtration dans un film d'eau « film straining » (cf. Figure I.1c)). Les films d'eau se forment généralement suite à la disparition des ménisques, c'est-à-dire à un stade de séchage avancé. Quant à la coalescence, elle nécessite une longue durée de mise en contact des agglomérats avant de les cimenter. Ces deux exemples semblent indiquer que la diminution de mobilisation de particules sous l'effet des forces capillaires se produit plutôt à long terme.

Nous remarquons que les forces capillaires interviennent à la fois dans l'augmentation et la diminution de la mobilisation des particules durant la pause. De plus, les résultats sur l'augmentation du temps de percée (chapitre précédent) ont montré la dépendance de la mobilisation vis-à-vis de l'avancement du front de séchage dans le sol (i.e. développement des interfaces eau-air et des forces capillaires).

Bien qu'il faille encore le prouver, la capillarité semble être le mécanisme responsable de la mobilisation des particules qui pourrait expliquer à la fois la montée et la descente : la montée serait due aux forces capillaires associées à un séchage peu avancé (pauses courtes) tandis que la descente serait due aux forces capillaires associées à un séchage prolongé (pauses longues).

Une façon élémentaire de vérifier l'implication de la capillarité dans la mobilisation de particules, serait de suivre l'évolution des forces capillaires pendant la pause à l'aide de tensiomètres implantés dans une colonne de sol, et ceci dans le but de trouver une corrélation, ou une proportionnalité, entre le comportement de la mobilisation et celui de la capillarité. Il est certain que même dans le cas optimiste où une telle corrélation existerait, celle-ci ne permettrait pas de préciser exactement si tel ou tel mécanisme capillaire serait le responsable principal de la mobilisation. Néanmoins, ce serait un indice favorable pour une certaine

catégorie de mécanismes (i.e. la capillarité), montrant ainsi la direction dans laquelle une recherche plus approfondie doit être menée.

4.4. Conséquences - Synthèse

Nous croyons que nos résultats expérimentaux ont des conséquences importantes quant à l'interprétation des expériences d'infiltration qui étudient la mobilisation et le transport des particules colloïdales. A la lumière de ces résultats, il apparaît maintenant qu'il serait insensé de comparer les quantités de particules lessivées entre un événement pluvieux et un autre si la durée de pause n'a pas été maintenue constante.

Par exemple, dans une publication récente, Zhuang et al. (2007) ont effectué des infiltrations sur des sédiments de Hanford. Les infiltrations ont été interrompues par des pauses de l'ordre de 40 minutes. Ils ont observé un grand pic initial au début de l'infiltration et des petits pics secondaires (de plus en plus petits) chaque fois que l'irrigation est reprise. Le fait que les pics secondaires sont plus petits que le pic initial a été attribué à « une plus grande quantité de particules mobilisables avant les premiers effluents ». Ceci est vrai seulement en partie, car nous savons maintenant que la quantité de particules mobilisables dépend de la durée de chaque interruption de pluie (pause), et ce paramètre n'a pas été spécifié dans le travail de Zhuang et al. (2007). Il n'y a aucun doute « qu'un excès de colloïdes soit mobilisé durant les phases transitoires de l'écoulement » (Zhuang et al., 2007). Néanmoins, il faut garder en tête que sous les mêmes conditions expérimentales (mêmes intensité et force ionique de la pluie), les mêmes phases transitoires d'écoulement peuvent récupérer plus ou moins de particules suivant que les forces transitoires agissent sur une matrice plus ou moins ramollie, et suivant la mobilisation qui a eu lieu durant la pause précédente.

Ainsi, les anciens résultats de la littérature et leurs interprétations, doivent être considérés avec précaution, et dans le futur, les études qui ont pour but de comparer les quantités de particules lessivées sous différentes conditions (pH, force ionique, intensité de pluie par exemple) doivent vérifier que ce '**paramètre d'histoire du sol**' soit parfaitement contrôlé.

Chapitre 5 : Application du modèle de transport de particules à une large série de données expérimentales

Le modèle développé dans la deuxième partie considère la variabilité temporelle du stock de particules mobilisables durant l'événement pluvieux via une cinétique de détachement variable avec le temps. L'état initial du stock au début de chaque événement pluvieux (i. e. la concentration initiale en particules sur les parois des macropores) évolue au fur et à mesure que les particules sont détachées. Par contre, l'état final du stock à la fin de chaque événement pluvieux (i.e. la concentration finale en particules sur les parois des macropores) est considéré comme l'état initial de l'événement suivant, sans subir aucun changement durant la période de pause qui les sépare. La question de la variabilité des stocks de particules mobilisables pendant la pause a fait l'objet d'étude de la troisième partie. Ainsi, l'état du stock est en évolution perpétuelle : que ce soit durant l'événement pluvieux, d'une part, ou durant la période de pause, d'autre part.

La raison pour considérer dans le modèle une cinétique de détachement variable avec le temps était la forme non classique des particulogrammes observés par Rousseau (2003). L'application de ce modèle est donc plus intéressante pour des particulogrammes qui ne peuvent pas être simulés par une cinétique classique de 1^{er} ordre. Au contraire, les particulogrammes correspondant aux essais de pause présentés dans la troisième partie sont facilement modélisables par une cinétique classique de 1^{er} ordre. En effet, ils présentent tous la forme simple d'un pic initial de concentration suivi d'une décroissance vers un niveau bas et constant. Néanmoins, ces particulogrammes ont été simulés avec le même modèle afin :

- 1) de tester le modèle sur un très large ensemble de données expérimentales (plus de 140 particulogrammes) ce qui permet d'obtenir des distributions statistiques des paramètres, et ainsi, définir et préciser leurs domaines de validation,
- 2) de lier les valeurs des paramètres aux conditions expérimentales pour améliorer la prédiction de mobilisation de particules, et de tester le modèle sur un sol différent (sol d'Avignon) ; le modèle ayant été testé uniquement sur le sol de Versailles.

5.1. Traitement statistique des paramètres optimisés

Le jeu de paramètres à optimiser par particulogramme est : α , β , k_{det} , k_{att} , k_{acc} , pour les 143 particulogrammes. Lors des simulations, l'optimum de chaque paramètre est recherché dans les intervalles définis par l'analyse de sensibilité du modèle (deuxième partie, paragraphe 4.3.2 dans Majdalani et al., 2007a). La distribution des paramètres optimisés est ensuite analysée à l'aide des histogrammes de fréquence pour lesquels l'intervalle de variation est divisé en un nombre de N_c classes, définies par :

$$N_c = 1 + 4/3 \ln (N) \quad (1)$$

Avec N la taille de l'échantillon ($N = 143$, $N_c = 8$).

Les distributions statistiques (Figure III.5.1) montrent que la majorité des valeurs optimisées sont concentrées dans la 1^{ère} classe ; avec les pourcentages suivants : α (81.8 %), β (44.7 %), k_{det} (95 %), k_{att} (88.8 %), k_{acc} (58 %), et $k_{det} u_{in}$ (96.5 %).

Les paramètres β et k_{acc} sont plus dispersés que α , k_{det} , et k_{att} . Globalement, les distributions sont asymétriques, ce qui suggère qu'elles pourraient suivre des lois de type Gamma ou Gumbel (double exponentielle). Ces résultats permettent d'affiner l'espace des paramètres, par exemple, en réduisant leurs domaines aux classes majoritaires uniquement (Figure III.5.2). Ceci aura comme conséquences une plus grande économie en temps de calcul, ce qui concerne la méthode inverse (Algorithmes Génétique), mais surtout, permettra une meilleure identification (numérique) des paramètres optimaux.

Remarque : Sol de Versailles

En comparant les valeurs optimisées avec les paramètres obtenus sur le sol de Versailles (deuxième partie, Table 3 dans Majdalani et al., 2007a), il en résulte pour les différentes classes :

- Toutes les valeurs de α (10 valeurs sur 10) sont comprises dans la première classe de ce paramètre (domaine de variation [0 ; 0.09]),
- 9 valeurs sur 10 de β sont comprises dans la première classe de ce paramètre (domaine de variation [0 ; 0.09]),
- 8 valeurs sur 10 de k_{acc} sont comprises dans la première classe de ce paramètre (domaine de variation [0 ; 0.12]),
- 6 valeurs sur 10 de $k_{det} u_{in}$ sont comprises dans la première classe de ce paramètre (domaine de variation [0 ; 4.1]),

- 1 valeur sur 10 de k_{att} est comprise dans la première classe de ce paramètre (domaine de variation [0.01 ; 6.38]), mais 7 valeurs sur 10 de k_{att} sont comprises dans la deuxième classes de ce paramètre (domaine de variation [0.01 ; 12.76]).

Malgré la taille limitée du jeu de paramètres pour le sol de Versailles ($N = 10$), il ressort une différence du domaine de variation du paramètre k_{att} .

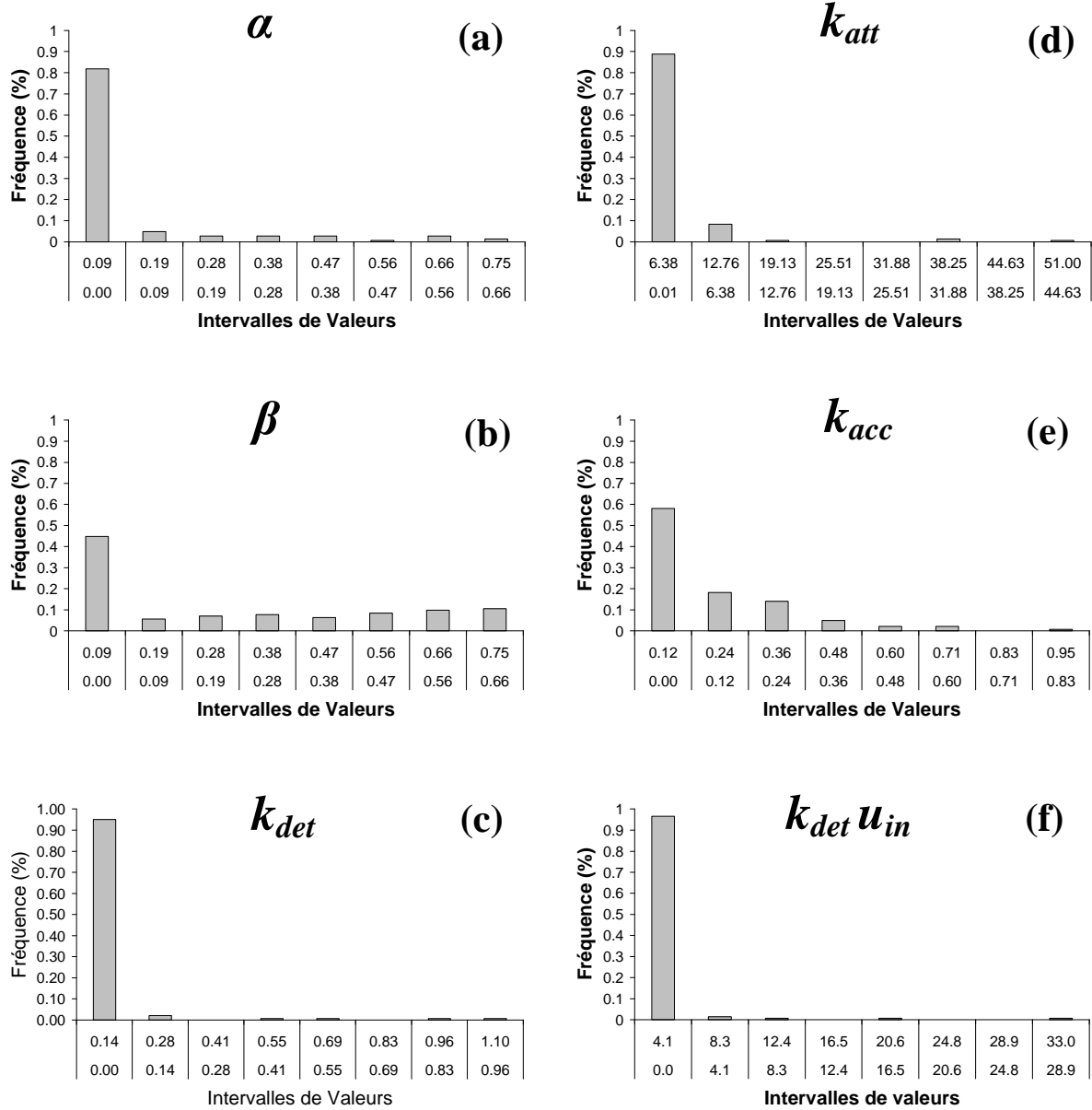


Figure III.5.1 : Distribution statistique des paramètres optimisés pour le modèle pour un échantillon de taille $N = 143$ valeurs et un nombre de classe $N_c = 8$: (a) Le paramètre α varie entre 0 et 0.75 [$\text{mg}^{-1} \text{ l}$], (b) Le paramètre β varie entre 0 et 0.75 [$\text{mg}^{-1} \text{ l}$], (c) Le paramètre k_{det} varie entre 0 et 1.10 [mm^{-1}], (d) Le paramètre k_{att} varie entre 0 et 51 [h^{-1}], (e) Le paramètre k_{acc} varie entre 0 et 0.95 [$\text{mg l}^{-1} \text{ h mm}^{-1}$], (f) Le paramètre $k_{det} u_{in}$ varie entre 0 et 33 [h^{-1}].

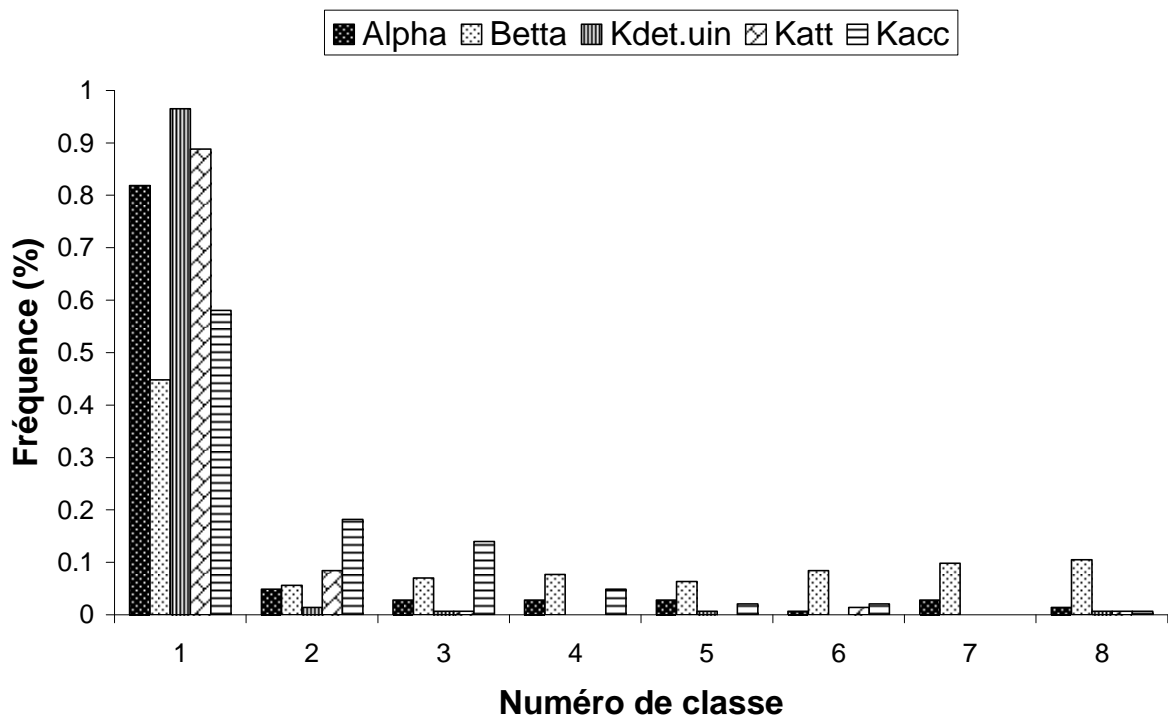


Figure III.5.2 : Fréquences de l'ensemble des paramètres suivant le numéro de classe. La majorité des valeurs est concentrée dans la première classe.

5.2. Variation des paramètres du modèle en fonction de la pause

Le modèle de transport a initialement été établi à partir des données du sol de Versailles. Dans ce chapitre, le modèle a été appliqué aux particulogrammes du sol d'Avignon afin de tester sa capacité à simuler la mobilisation pour un autre sol. Vu la simplicité de forme des particulogrammes, le modèle reproduit aisément les données expérimentales obtenues sur le sol d'Avignon (Figure III.5.3).

L'analyse de sensibilité et la validation du modèle (deuxième partie, Majdalani et al., 2007a) a montré que le pic du particulogramme est principalement contrôlé par le paramètre k_{acc} . Les expériences menées sur le sol d'Avignon ont montré d'une part, que le pic du particulogramme est contrôlé par la durée de pause qui sépare deux événements pluvieux, et d'autre part, que le cumul de particules par événement pluvieux est principalement dû à la contribution du pic. L'évolution du paramètre k_{acc} en fonction de la pause (Figure III.5.4) montre que celui-ci varie d'une manière très semblable au cumul de particules, que ce soit pour la colonne G, G bis, H, E ou M.

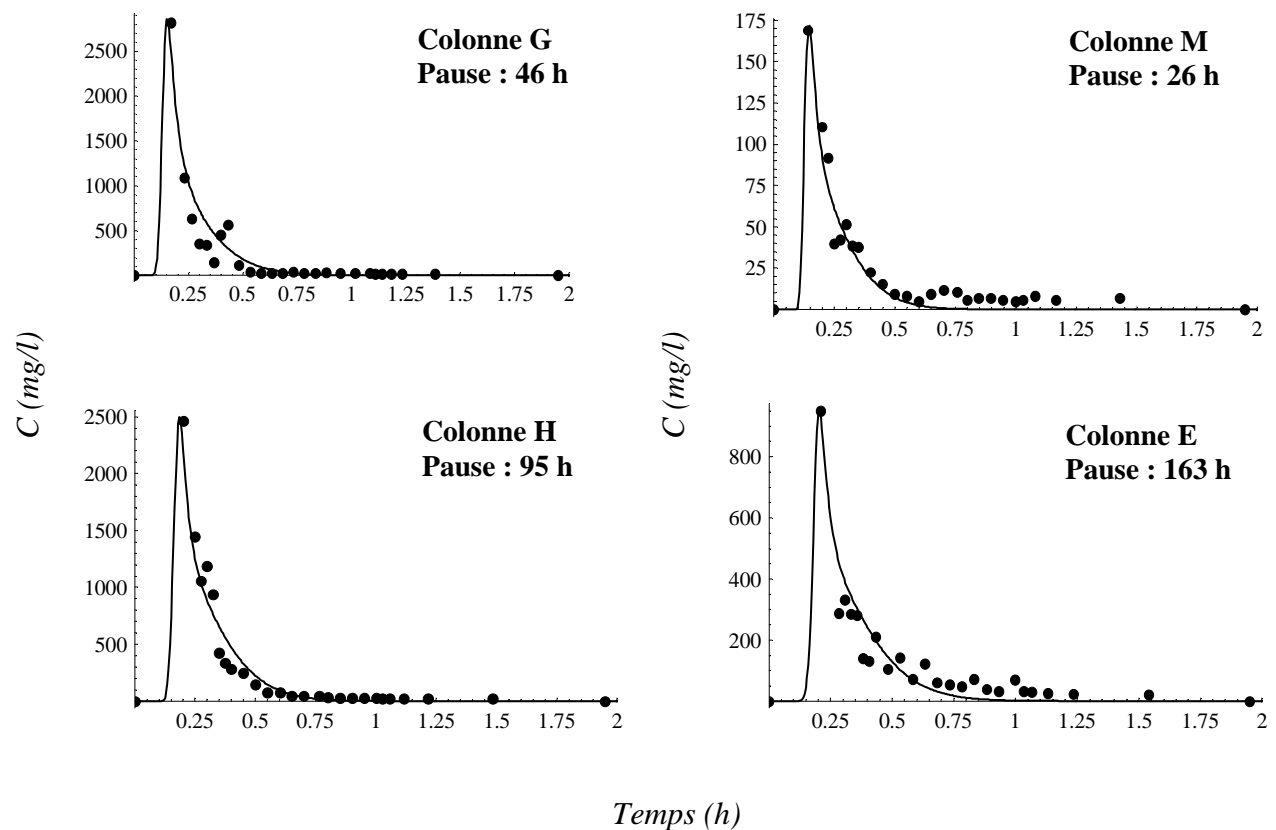


Figure III.5.3 : Exemple de la capacité du modèle à reproduire les données expérimentales du sol d'Avignon

Bien que la valeur de k_{acc} soit estimée à partir du pic de l'événement pluvieux, elle est plutôt liée à la durée de pause qu'à l'événement pluvieux lui-même. Le fait que k_{acc} soit lié à une condition expérimentale (i.e. la durée de pause) permet de prédire l'évolution de ce paramètre en s'appuyant sur le comportement de mobilisation type 'montée-maximum-descente'. De manière générale, *le coefficient k_{acc} varie en fonction de la pause dans les mêmes proportions que le cumul de particules lessivées par événement pluvieux, les autres conditions expérimentales étant maintenues constantes* (Figure III.5.5).

5.3. Synthèse

La simulation des particulogrammes résultant des essais de pause a permis d'obtenir des distributions statistiques des paramètres du modèle de transport de particules. Ces distributions sont asymétriques et permettent d'affiner le domaine de variation des paramètres. Les résultats de modélisations montrent que le modèle reproduit bien les particulogrammes. Notamment le paramètre k_{acc} qui contrôle le pic du particulogramme, est lié aux particules mobilisées pendant la pause.

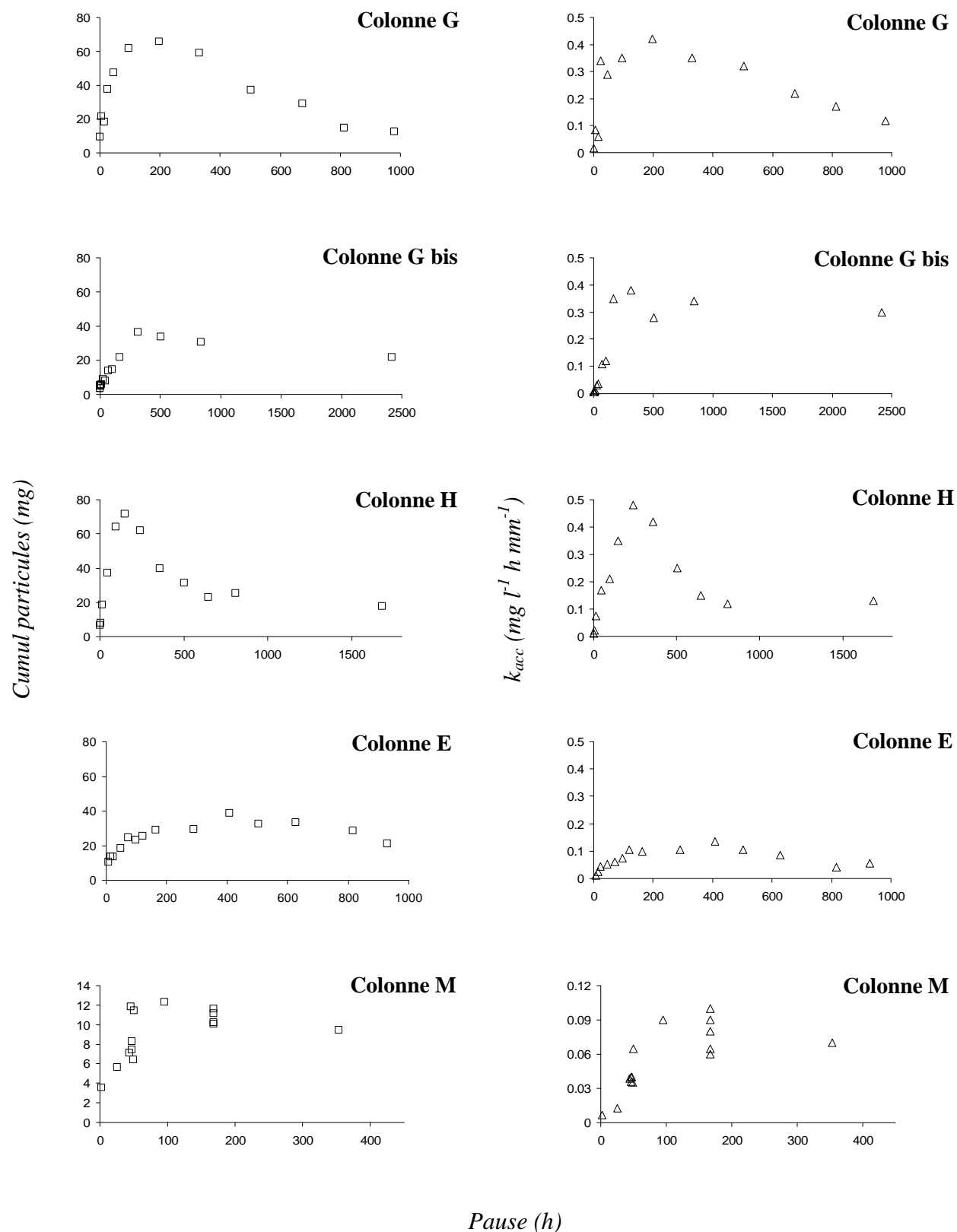


Figure III.5.4 : Comparaison entre l'évolution du cumul de particules et celle du paramètre k_{acc} en fonction de la pause, et ceci pour les colonnes G, G bis, H, E, et M du sol d'Avignon.

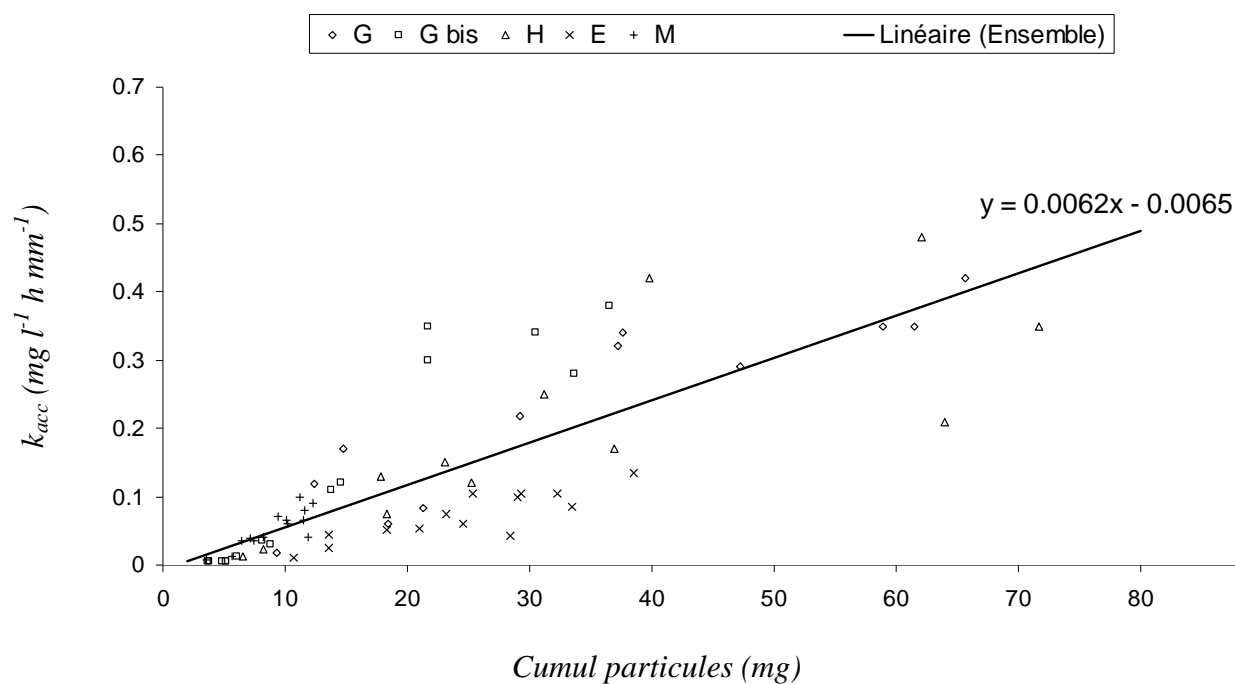


Figure III.5.5 : Variation du paramètre k_{acc} en fonction du cumul de particules sur chacune des colonnes du sol d'Avignon : G, G bis, H, E et M. La régression linéaire sur l'ensemble des valeurs ($R^2 = 0.6711$) montre que l'évolution de k_{acc} peut être déduite à partir des résultats de mobilisation (cumul de particules).

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Conclusions et perspectives

Dans cette thèse, nous avons étudié la mobilisation in-situ de particules colloïdales dans des colonnes de sol non remaniées sous des conditions non saturées. La nature même de notre objet d'étude (i.e. la mobilisation in-situ) traite avec un stock de particules inconnues (quantitativement et qualitativement) au préalable par l'expérimentateur. C'est là où réside la complexité de notre problème en comparaison avec la majorité d'études de mobilisation existantes dans la littérature qui consistent à étudier la mobilisation de particules homogènes, ou modèles (e. g. billes de latex), ayant des propriétés bien connues. Elles sont injectées en surface de colonne en quantité bien déterminée, ce qui rend moins compliqué l'étude du bilan de masse du partage entre particules sortant de la colonne et celles restant attachées au sol.

S'intéresser aux particules que le sol lui-même peut fournir, nous mène à supposer qu'il existe un « pool » (stock) de particules mobilisable susceptible d'évoluer avec le temps (i.e. l'histoire de la colonne). L'évolution temporelle de la mobilisation a lieu soit pendant un événement pluvieux, soit pendant la période d'interruption de pluie (pause) qui sépare deux événements successifs. Ainsi, l'état du stock serait en évolution permanente.

Dans la continuité du travail de Rousseau (2003), nous nous sommes appuyés sur ses données expérimentales afin d'étudier l'évolution temporelle du stock de particules pendant l'événement pluvieux (deuxième partie). Les particulogrammes de Rousseau (2003) avaient une forme très différente du comportement typique observé dans la littérature, et suggéraient la possibilité de variation temporelle du stock au fur et à mesure que la mobilisation prend place au cours de l'événement pluvieux. Nous avons modélisé ces particulogrammes en supposant une cinétique de détachement de première ordre ayant un coefficient de détachement qui varie avec le temps (i.e. avec la quantité de particules déjà détachées) via une fonction empirique E , appelée efficacité du détachement. Ainsi, nous avons élaboré un modèle numérique capable de simuler avec succès les différents comportements de mobilisation observés par Rousseau (2003). Une relation de type seuil liant les paramètres du modèle à la force ionique a été proposée à partir de 10 jeux de paramètres.

Une amélioration future du modèle consistera, par exemple, à remplacer la fonction empirique d'efficacité E par une approche dérivée de considérations théoriques portant sur le détachement de particules (terme source). Par ailleurs, il faudra multiplier le nombre de jeux de paramètres (à travers de nouvelles expériences) pour que les relations qui lient les paramètres du modèle aux conditions expérimentales soient plus significatives. Il serait intéressant que les nouvelles expériences soient faites sur un sol qui possède un comportement de mobilisation non typique (analogue à celui de Rousseau (2003)) reflétant une dynamique du stock durant l'événement pluvieux.

Dans la deuxième partie, l'état initial du stock au début de chaque événement pluvieux évoluait uniquement durant l'événement pluvieux. L'état final du stock à la fin de chaque événement pluvieux était sensé représenter l'état initial du stock de l'événement suivant, sans qu'il y ait aucun changement durant la période de pause qui sépare deux événements successifs. Dans la troisième partie, nous avons envisagé la question de la variabilité du stock de particules mobilisables pendant la pause. Ceci été fait en étudiant la quantité de particules lessivées par événement pluvieux en fonction de la durée de pause séparant deux événements successifs. Nous avons trouvé un comportement de mobilisation assez particulier durant la pause :

La quantité de particules lessivées par événement pluvieux augmentait avec la pause pour atteindre un maximum, ensuite elle diminue pour des pauses de plus en plus grandes.

Ce comportement est reproductible sur des colonnes de sol différentes ainsi que sur une même colonne avec deux séries successives de tests de pauses. Il est indépendant de la force ionique de la solution infiltrante. Il semble aussi (ce qui reste à confirmer) que ce comportement serait indépendant de l'intensité de pluie imposée et de la nature du sol. Bien que l'amplitude de la mobilisation soit atténuée avec un nombre croissant d'événements pluvieux, le comportement de mobilisation continue à être reproductible. Ce comportement n'est pas lié à la manière de tester les pauses (i.e. ordre des pauses). Nous pouvons donc conclure qu'à chaque durée de pause correspond une mobilisation de particules différente.

Notre travail se distingue de la majorité d'études traitant de la mobilisation et le transport de particules par le fait que nous considérons que les particules lessivées durant un événement pluvieux ne sont pas uniquement attribuées à des mécanismes agissant pendant l'événement pluvieux lui-même, mais aussi à d'autres mécanismes qui agissent pendant la période d'interruption de pluie (pause) entre un événement et un autre. Nos résultats ont des conséquences importantes vis-à-vis de l'interprétation des expériences d'infiltration traitant la mobilisation et le transport des particules colloïdales. Il serait dorénavant inexact de comparer les quantités de particules lessivées entre un événement pluvieux et un autre sous différentes conditions expérimentales si la durée de pause (i. e. le paramètre histoire de la colonne) n'a pas été maintenue constante.

La mobilisation de particules durant la pause peut être due à plusieurs mécanismes que ce soit pour le détachement (phase de montée) ou l'attachement (phase de descente). Cependant, certains indices évoquent que la capillarité pourrait être le responsable principal de mobilisation. Ceci reste à confirmer en suivant l'évolution de la pression capillaire du sol pendant la pause et de vérifier si les forces capillaires sont corrélées au comportement de mobilisation. Dans ce cas, parmi les effets des forces capillaires à approfondir, au niveau microscopique, se trouvent : le « cracking », l'adsorption à l'interface eau-air, le

ramollissement de la matrice, et la coalescence. Les phénomènes capillaires étant liés aux diamètres des pores, le suivi de l'évolution du réseau poral du sol (par tomographie par exemple) permettra une meilleure identification des mécanismes de mobilisation.

L'application du modèle élaborée en deuxième partie sur tous les particulogrammes résultant de l'étude de l'effet de pause sur la mobilisation (troisième partie) ont permis de lier un de ses paramètres (k_{acc}) à une condition expérimentale (la durée de pause), ce qui permet de prédire l'évolution de ce paramètre en fonction de la mobilisation de particules. L'étude statistique des paramètres optimisés sur le sol d'Avignon a permis de préciser les fonctions de distribution des paramètres du modèle. Les résultats montrent des distributions asymétriques avec le plus grand nombre de valeurs concentrées dans une seule classe.

En plus des perspectives spécifiques énoncées ci-dessus, et issues directement de nos résultats de modélisation ou expérimentaux, nous pouvons dégager quelques idées générales pour la poursuite de ce travail.

Les perspectives à court terme seraient de comparer les variations de mobilisation dues à un changement de force ionique de la solution infiltrante (respectivement de l'intensité de pluie imposée) à celles dues au changement de la durée de pause. Ceci permettrait de hiérarchiser les facteurs de mobilisation pour un sol donné.

L'identification des mécanismes de mobilisation pendant la pause permettrait d'élaborer un modèle à base physique pour prédire l'évolution temporelle du stock de particules. Cette étape nécessiterait de travailler sur des milieux artificiels bien contrôlés (au lieu des sols réels) avec probablement des particules marquées. Il s'agirait d'expériences ciblées visant à mettre en évidence un mécanisme de mobilisation particulier, par exemple, la capillarité.

Il est aussi important d'évaluer le rôle de l'activité biologique (les bactéries) dans la mobilisation des particules. Cette composante n'a pas été prise en compte dans notre étude.

Pour l'instant, nos expériences et les conclusions qui en découlent sont tirées à partir de colonnes de laboratoire. Il serait intéressant de confronter nos connaissances de petite échelle au terrain naturel (grande échelle) où le milieu est hétérogène et anisotrope.

A long terme, notre ambition serait d'élaborer un seul modèle prédictif qui englobe à la fois la mobilisation de particules durant la pause et durant l'événement pluvieux : un modèle capable de « raconter l'histoire complète de la mobilisation ».

ANNEXES

ANNEXE I

L'optimisation des paramètres par la méthode inverse des Algorithmes Génétiques

(Travail soumis Majdalani et al., 2007b)

L'optimisation des paramètres par la méthode inverse des Algorithmes Génétiques

1. Définition

L'optimisation est le processus d'améliorer. Elle consiste à essayer des variations d'un concept initial et à utiliser l'information acquise afin d'améliorer l'idée. L'ordinateur est un outil parfait pour l'optimisation quand l'idée (ou le paramètre qui influe cette idée) peut être mise sous un format électronique. Après avoir reçu des données, l'ordinateur fournit une solution. Est ce la seule solution ? La plupart du temps non. Est ce la meilleure solution ? C'est une question difficile. L'optimisation est l'outil mathématique sur lequel on compte pour obtenir ces réponses.

Dans ce chapitre, nous donnons un aperçu général des méthodes d'optimisation déterministes (dites « classiques »), et nous introduisons ensuite les méthodes d'optimisation « naturelles » (parmi lesquelles figurent les algorithmes génétiques) tout en montrant la différence d'approche qui existe entre ces deux familles.

2. Résoudre versus optimiser

La terminologie “meilleure” solution implique qu'il existe plus d'une seule solution et que les différentes solutions n'ont pas une valeur égale. L'optimisation est la procédure d'ajustement des entrées d'une expérience ou d'un processus mathématique afin de trouver la solution (le résultat ou le minimum ou le maximum). L'entrée correspond aux paramètres; le processus ou la fonction est appelé fonction objective ou évaluation du coût ; et la sortie est le coût (Figure 1). Si le processus est une expérience, l'entrée sera l'ensemble des variables physiques de l'expérience.

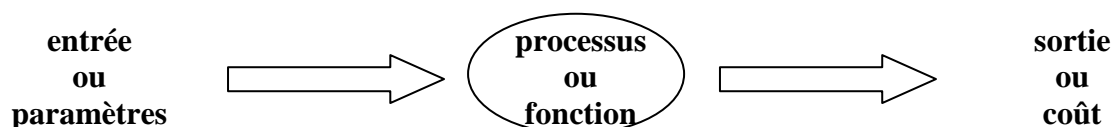


Figure 1 : Diagramme de l'optimisation d'une fonction ou d'un processus. Le processus d'optimisation fait varier l'entrée afin d'aboutir à la sortie voulue.

Les approches d'optimisation sont semblables à celles de la résolution d'une fonction (ou à la recherche des racines d'une fonction), à la différence près qu'elles sont plus difficiles. En effet, borner une racine ou un optimum est une importante étape vers sa découverte. Dans le cas d'une seule variable, le zéro est borné dès qu'un point positif et un point négatif ont été trouvés. D'autre part, borner un minimum exige la connaissance de trois points, avec le point médian ayant une valeur inférieure à celle des deux points extrêmes. Dans l'approche mathématique, résoudre consiste à chercher les zéros d'une fonction, alors que l'optimisation consiste à chercher les zéros de la fonction dérivée. Trouver la fonction dérivée ajoute une étape supplémentaire au processus d'optimisation. Parfois, la dérivée peut ne pas exister ou est très difficile à trouver.

Une autre difficulté dans l'optimisation consiste à savoir si le minimum trouvé est bien le meilleur optimum global ou bien s'il ne s'agit que d'un optimum local. Dans la résolution d'une fonction, ce type de difficulté n'existe pas : une racine est aussi bonne qu'une autre, puisque toutes les racines annulent la fonction. Trouver le minimum d'une fonction non linéaire est une tâche particulièrement difficile. Avec des problèmes fortement non linéaires, les approches typiques consistent à linéariser le problème sur une région confinée ou à restreindre l'optimisation à une petite région.

3. Les catégories d'optimisation

Les algorithmes d'optimisation peuvent être divisés en six catégories. Chaque catégorie se divise à son tour en deux branches. Les six divisions, ainsi que leurs branches, ne sont pas nécessairement mutuellement exclusives :

1 – Optimisation par tâtonnement ou par fonction. L'optimisation par tâtonnement concerne les processus d'ajustement des paramètres (ou entrée) qui affectent le coût (ou la sortie) sans avoir une connaissance du processus qui produit cette sortie. Les empiristes préfèrent ce type d'approche. Par contre, dans l'optimisation par fonction, l'évaluation du coût (ou la fonction objective) est décrite par une formule mathématique. Les théoriciens préfèrent ce type d'approche.

2 - Optimisation mono dimensionnelle ou multidimensionnelle. Plus le nombre de variables du problème augmente, plus l'optimisation devient difficile.

3 – Optimisation dynamique ou statique. L'optimisation dynamique signifie que la sortie (ou le coût) est fonction du temps, alors que l'optimisation statique signifie que la sortie est indépendante du temps.

4 – Optimisation avec variables (paramètres) discrètes ou continues. Les variables discrètes possèdent un nombre fini de valeurs possibles, alors que les variables continues possèdent un nombre infini de valeurs possibles.

5 – Optimisation avec ou sans contrainte. Si les paramètres du problème ont des contraintes, ces dernières sont incorporées dans la fonction coût sous forme d'égalités et d'inégalités entre les paramètres. Une optimisation sans contraintes permet aux paramètres de prendre n'importe quelles valeurs.

6 – Certains algorithmes minimisent le coût en partant d'une valeur initiale de la variable (ou de plusieurs variables). Ces algorithmes de minimisation se coincent facilement dans un minimum local mais tendent à être rapides. Ce sont les algorithmes traditionnels d'optimisation qui sont basés sur des méthodes analytiques. Le passage d'une variable à la suivante est contrôlé par une séquence d'étapes bien déterminées. D'autre part, les méthodes aléatoires (random methods) utilisent des calculs probabilistes pour passer d'une variable à une autre. Ils tendent à être plus lents mais réussissent mieux à trouver le minimum global.

4. Les algorithmes de minimisation

Le but de toutes les routines d'optimisation est de parcourir la surface de coût (toutes les valeurs possibles d'une fonction) pour trouver le coût minimum. La surface de coût possède normalement plusieurs sommets, vallées et arêtes. L'algorithme d'optimisation part d'un point quelconque de cette surface et essaie de trouver d'une manière intelligente le minimum (l'altitude minimale ou la vallée la plus profonde). Il existe plusieurs façons d'aboutir ou de glisser vers le fond à partir d'un point aléatoire. Une fois arrivé au fond, il n'est pas garantie qu'un autre point encore plus bas ne peut exister à l'autre bout de l'arête. C'est pour cette raison que les algorithmes de minimisation n'aboutissent pas généralement au minimum global sauf si la surface de coût est quadratique. Ci-dessous quelques exemples d'algorithmes classiques de minimisation.

4. 1. L'optimisation analytique

Les mathématiques fournissent des outils pour trouver le minimum de plusieurs fonctions d'évaluation de coût. En se limitant au cas mono dimensionnel (problème à une seule variable), un extremum est trouvé quand la dérivée première de la fonction coût s'annule. Si la dérivée seconde est supérieure à zéro (respectivement inférieure à zéro), l'extremum est un

minimum (respectivement maximum). Pour trouver les extremums d'une fonction à deux ou plusieurs variables, il faut prendre son gradient et le mettre égal à zéro, $\nabla f(x, y)=0$. Les solutions x_m et y_m correspondent à des minimums si $\nabla^2 f(x, y)>0$. Cette approche trouve rapidement chaque minimum mais demande un schéma de recherche pour trouver le minimum global. En plus, des fonctions continues ayant des dérivées analytiques sont nécessaires (sauf si les dérivées sont calculées numériquement, ce qui conduit à des évaluations supplémentaires de la fonction coût en plus du manque de précision). Si le problème est à plusieurs variables, il serait difficile de trouver tous les extremums. Le gradient de la fonction coût servira de pointeur vers le chemin de plus grande pente. Ceci marche bien quand le minimum est proche et quand la surface de coût ne contient pas des falaises ou des bords où le gradient ne peut pas être calculé.

Bien que l'optimisation analytique comporte plusieurs inconvénients, la plupart des approches numériques sont basées sur elle. Typiquement, un algorithme part d'un point aléatoire de l'espace de paramètres, calcule le gradient, et se dirige vers le bas pour atteindre le fond. Ces méthodes numériques descendent la vallée d'une manière rapide mais ont tendance à tomber sur un minimum local au lieu du minimum global. En plus, elles ne fonctionnent pas bien avec les variables discrètes. Quelques méthodes numériques basées sur l'optimisation analytique sont : *simplex method*, *Newton's method*, *steepest descent method*.

4. 2. Nelder-Mead Downhill Simplex Method

La méthode *downhill simplex method* a été introduite par Nelder et Mead en 1965 (Nelder et Mead, 1965). C'est une méthode qui ne demande pas le calcul de fonctions dérivées. Un simplex est la figure géométrique la plus élémentaire qui peut être formée en dimension N et qui possède $N + 1$ côtés (par exemple, un triangle dans un espace à deux dimensions). La méthode part de $N + 1$ points qui forment le simplex initial. Le but est de déplacer ce simplex pour qu'il contourne le minimum, et ensuite de contracter (ou de serrer) le simplex autour du minimum jusqu'à une marge d'erreur acceptable. Afin de traiter les problèmes avec des contraintes sur les variables, Box (1965) a étendu *simplex method* et l'a appelé *complex method*. Cet algorithme n'est pas connu pour sa vitesse, mais il est suffisamment robuste pour qu'il soit attractif. Néanmoins, il mène à un minimum local au lieu du minimum global si jamais le simplex initial n'est pas proche de l'optimum global.

2.4. 3. Optimisation par minimisation de ligne

La plupart des méthodes d'optimisation appartiennent à la famille de méthodes de minimisations successives de ligne. Un algorithme part d'un point quelconque de la surface de coût, choisit une direction (ligne) pour se déplacer, et puis se déplace dans cette direction jusqu'à ce que la fonction coût commence à augmenter. Ensuite, la procédure est répétée dans une autre direction. Le choix de la direction de déplacement est critique pour la convergence de l'algorithme, ce qui a conduit à la naissance d'une variété d'approches.

Une approche très simple de la minimisation de ligne est la méthode de recherche suivant les coordonnées (Schwefel, 1995). Elle commence par un point arbitraire de la surface de coût et effectue une minimisation de ligne parallèlement à l'axe d'une variable. Ensuite, elle sélectionne une autre variable et effectue une minimisation de ligne parallèlement à l'axe de coordonnée correspondant. Ce processus continue jusqu'à ce qu'une minimisation de ligne soit faite suivant chacune des variables. L'algorithme reprend ensuite ce cycle jusqu'à ce qu'une solution acceptable soit trouvée. La Figure 2 montre un des chemins possibles de cet algorithme sur une surface quadratique.

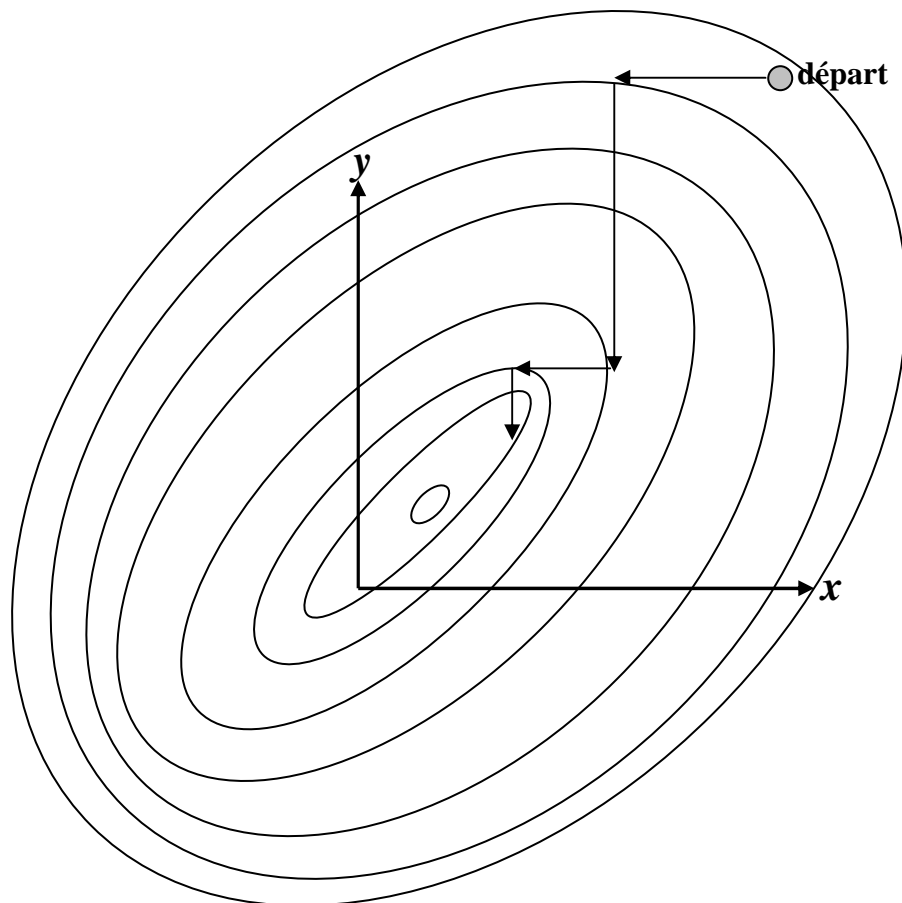


Figure 2 : Un des chemins possibles que la méthode de recherche suivant les coordonnées peut prendre sur une surface quadratique.

Rosenbrock (1960) a développé une méthode qui ne limite pas la direction de recherche aux axes des variables. La première itération de la méthode Rosenbrock utilise la recherche suivant les axes des variables pour obtenir le premier point amélioré. Ensuite, les axes subissent des rotations, et une recherche suivant les coordonnées sera effectuée parallèlement à chacun des nouveaux axes (Figure 3). Comme avant, le processus se répète jusqu'à ce qu'une solution acceptable soit trouvée. La recherche par minimisation de ligne trouve l'optimum suivant une direction ou une dimension. Tous les algorithmes de cette catégorie diffèrent par la direction de recherche qu'il faut prendre à une certaine étape.

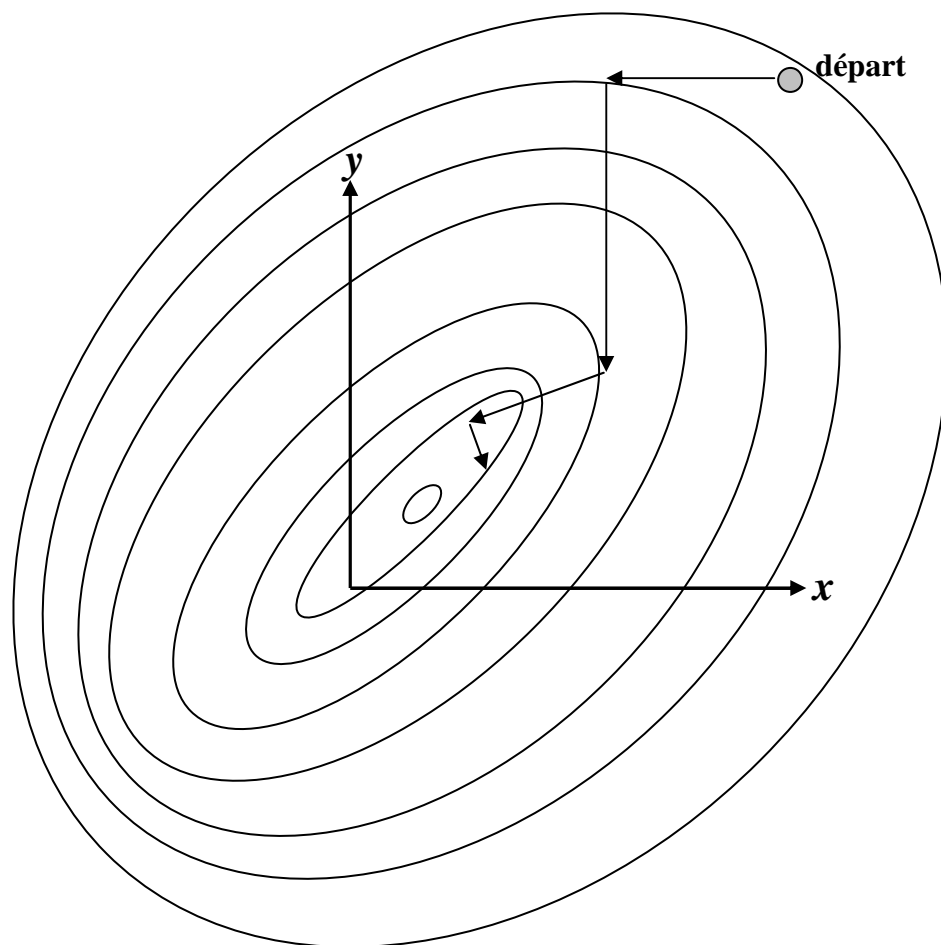


Figure 3 : Un des chemins possibles que la méthode Rosenbrock peut prendre sur une surface quadratique.

Une autre méthode d'optimisation par minimisation de ligne est le *steepest descent algorithm*. Cet algorithme, très populaire, a été introduit par Cauchy en 1847. Il part d'un point arbitraire de la surface de coût et effectue une minimisation suivant la direction du gradient. La formule simple de la $(n + 1)^{\text{ème}}$ itération est donnée par :

$$\begin{bmatrix} x_{n+1} \\ y_{n+1} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} x_n \\ y_n \end{bmatrix} - \gamma_n \nabla f(x_n, y_n) \quad (1)$$

où γ_n est un scalaire non négatif qui minimise la fonction dans la direction du gradient. Par définition, le nouveau gradient formé à chaque itération est orthogonal au gradient précédent. La figure 4 montre un chemin possible du *steepest descent algorithm* sur une surface quadratique. Chaque chemin est perpendiculaire aux contours ainsi qu'au chemin suivant et au chemin précédent.

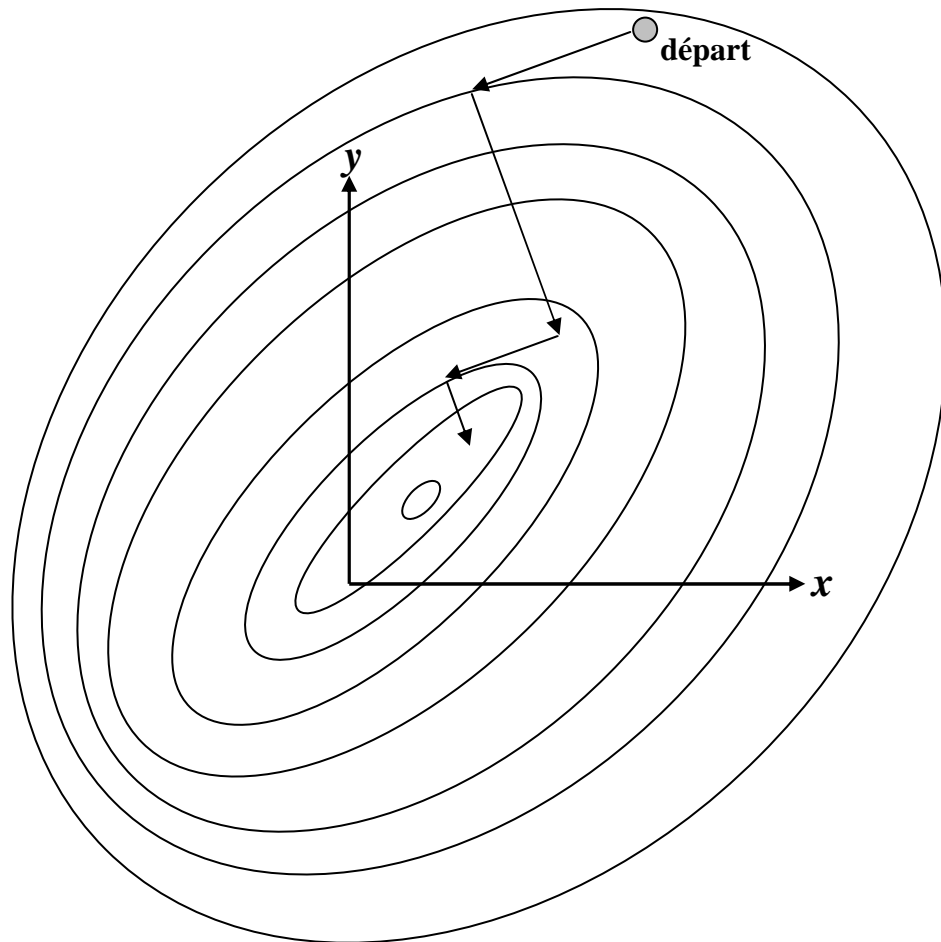


Figure II.2.4 : Un des chemins possibles du *steepest descent algorithm* sur une surface quadratique.

Des méthodes plus efficaces que *steepest descent* ont été développées en s'inspirant de la méthode de *Newton*. La méthode de *Newton* est basée sur un développement en séries de Taylor de la fonction autour du point x_n donné par :

$$f(x) = f(x_n) + \nabla f(x_n)(x - x_n)^T + \frac{(x - x_n)^T H (x - x_n)}{2!} + \dots \quad (2)$$

où

x_n = point autour duquel la série de Taylor se développe

x = point proche de x_n

x^T = le vecteur transposé de x

H = le *Hessien* (matrice dont les éléments sont donnés par $h_{ij} = \partial^2 f / \partial x_i \partial x_j$)

En posant le gradient des deux premiers termes de l'équation (2) égal à zéro et en partant d'un point initial x_0 , le point x_{n+1} se déduit du point x_n par :

$$x_{n+1} = x_n - H^{-1} \nabla f(x_n) \quad (3)$$

Le *Hessien* est rarement connu. Plusieurs algorithmes ont alors été développés autour de cette formulation. En général, ces techniques sont formulées de la manière suivante :

$$x_{n+1} = x_n - \alpha_n A_n \nabla f(x_n) \quad (4)$$

où

α_n = le pas à l'itération n

A_n = matrice d'approximation du *Hessien* à l'itération n

Si $A_n = I$, la matrice identité, (4) devient la méthode *steepest descent*. Si $A_n = H^{-1}$, (4) devient la méthode de *Newton*. Des méthodes développées entre ces deux extrêmes donnent une approximation du *Hessien*. Parmi ces méthodes, citons l'algorithme Davidon-Fletcher-Powell (DFP) (Powell, 1964) et l'algorithme Broyden-Fletcher-Goldfarb-Shanno (BFGS) découvert indépendamment par ses quatre auteurs (Broyden, 1965 ; Fletcher, 1963 ; Goldfarb et Lapidus, 1968 ; Shanno, 1970). La Figure 5 montre un chemin possible de l'algorithme DFP sur une surface quadratique. Ces dernières méthodes sont appelées “*quasi-Newton*” dans le sens qu'elles sont équivalentes à la méthode *Newton* concernant le choix du meilleur point à utiliser pour l'itération suivante, mais qu'elles n'utilisent pas le *Hessien* exact. Ces algorithmes ont l'avantage de converger rapidement. Par contre, leur inconvénient est de tomber sur un minimum proche du point de départ (un minimum local fort probablement), et d'échouer par suite à trouver le minimum global.

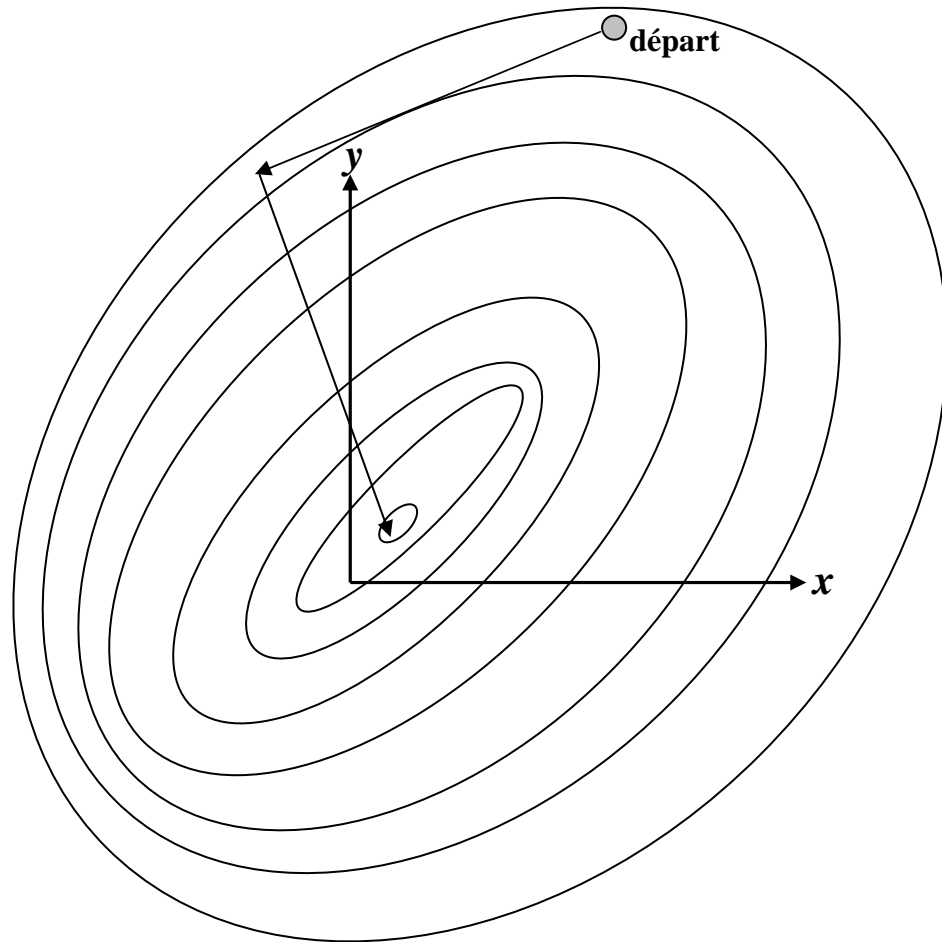


Figure 5 : Un des chemins possibles de l'algorithme Davidon-Fletcher-Powell (DFP) sur une surface quadratique.

5. Les méthodes d'optimisation naturelle

Les algorithmes classiques de minimisation brièvement présentés ci-dessous ont tous la même approche : partir d'un point arbitraire de l'espace de paramètres et descendre la vallée pour aboutir au minimum. Leur différence est dans quelle direction et de combien faut-il se déplacer. Les améliorations successives augmentent la vitesse de ces algorithmes mais n'ajoutent rien sur leur capacité à trouver le minimum global au lieu d'un minimum local.

De nouveaux algorithmes sont alors parus pour remédier aux inconvénients des algorithmes classiques : les algorithmes génétiques (Holland, 1975), le recuit simulé « simulated annealing » (Kirkpatrick et al., 1983), l'optimisation d'essaim de particules « particle swarm optimization » (Parsopoulos et Vrahatis, 2002), l'optimisation de colonie de fourmi « ant colony optimization » (Dorigo et Maria, 1997), et les algorithmes évolutionnaires « evolutionary algorithms » (Schwefel, 1995). Ces méthodes génèrent de nouveaux points dans l'espace de paramètres en appliquant des opérateurs sur les points actuels et en se

déplaçant statistiquement vers des régions plus optimales. Elles reposent sur une recherche intelligente dans un espace large mais fini. En plus, ces algorithmes ne demandent pas le calcul de la dérivée de la fonction coût, et peuvent par suite traiter des problèmes avec des variables discrètes et des fonctions coût non continues. Ils représentent des processus dans la nature et réussissent très bien à optimiser les phénomènes naturels.

6. Les algorithmes génétiques

Un algorithme génétique (AG) est une technique d'optimisation et de recherche basée sur les principes de la génétique et de la sélection naturelle. Un AG permet à une population d'individus d'évoluer suivant des règles de sélection spécifiées à un niveau qui maximise la performance (i.e., minimise la fonction coût). Cette méthode a été développée par Holland (1975) et popularisée par Goldberg (1989). L'AG effectue une recherche multidirectionnelle. Il commence par une population initiale aléatoire de candidats et conduit une recherche parallèle et probabiliste de l'espace solutions utilisant des 'opérateurs génétiques' pour former une nouvelle population de candidats. La population subit un processus d'évolution simulé. A chaque génération, les solutions relativement 'bonnes' vivent et se reproduisent, alors que les solutions relativement 'mauvaises' meurent. Pour distinguer entre les différentes solutions, une fonction objective (fonction d'évaluation) est utilisée : celle-ci joue le rôle d'environnement. Une population de candidats subit deux types de transformations : (i) l'accouplement (« crossover ») qui crée deux nouveaux individus (enfants) en combinant des parties de deux anciens individus (parents), et (ii) la mutation qui crée de nouveaux individus en introduisant de petits changements externes à des individus singuliers. L'accouplement et la mutation produisent de nouvelles régions de l'espace à explorer et transmettent l'information génétique d'une génération à une autre.

Quelques avantages d'un AG sont :

- L'optimisation avec des variables continues ou discrètes,
- Le traitement des problèmes à grand nombre de variables,
- L'optimisation des variables avec des surfaces de coût extrêmement complexes (l'AG permet d'échapper à un minimum local),
- L'optimisation sans besoin de calcul de fonctions dérivées,
- La recherche simultanée de l'optimum à partir d'un large échantillonnage de la surface coût,

- Le codage des variables, de façon à ce que l'optimisation soit faite avec les variables codées,
- La solution est une liste de variables optimums (une population), pas juste une solution singulière.

Ces avantages sont intéressants et peuvent conduire à des succès là où les approches traditionnelles d'optimisation échouent. Bien qu'il soit plus coûteux en temps de calcul, l'AG effectue une recherche plus complète de l'espace de paramètres. Il est bien entendu qu'un AG n'est pas la meilleure méthode pour résoudre tous les problèmes. Par exemple, les méthodes traditionnelles ont été bien adaptées pour trouver rapidement la solution d'une fonction analytique à quelques variables, ayant un comportement bien convexe. Pour des cas pareils, les méthodes analytiques surpassent les AG en trouvant rapidement le minimum, alors que l'AG est encore en train d'analyser les coûts de la population initiale. Par contre, quand le nombre de variables augmente, la surface de coût ne peut plus être visualisée (problème à trois variables, donc espace variables-coût à quatre dimensions). A ce moment là, aucune information ne peut être connue sur le comportement de la surface coût et son degré de complexité. En plus, si la fonction objective à minimiser ne possède pas une dérivée analytique, l'approximation de cette dérivée introduira des erreurs dans l'optimisation. Dans des cas pareils, il est plus convenable d'utiliser un algorithme qui puisse traiter les surfaces coûts inconnues et qui ne demande pas l'évaluation de la fonction dérivée.

7. L'algorithme génétique binaire : application à l'équation d'onde cinématique dispersive

L'algorithme génétique binaire utilise un codage binaire des paramètres à optimiser. Ainsi, les 'opérateurs génétiques' (accouplement et mutation) seront appliqués aux paramètres codés non pas aux vrais paramètres. Cet algorithme sera utilisé pour résoudre le problème inverse de l'équation d'onde cinématique dispersive donnant le flux d'eau $u(z, t)$ en fonction du temps. Cette équation comprend trois paramètres hydrodynamiques a , b , et v_θ à optimiser.

Composantes d'un algorithme génétique binaire

L'AG commence, comme tout autre algorithme d'optimisation, par la définition des : paramètres à optimiser, l'espace de paramètres, et la fonction coût (le coût associé à un certain jeu de paramètres). Il conclut, comme n'importe quel algorithme d'optimisation, par un test de convergence. Un organigramme des différentes composantes de l'AG est donné en Figure 6. Chacune de ces composantes sera discutée en détail.

Les expériences d'infiltration sur des colonnes de sols fournissent les hydrogrammes de drainage (flux d'eau expérimental en fonction du temps). La modélisation numérique de ce flux est fondée sur le modèle d'onde cinématique dispersive (Di Pietro et al., 2003). Le flux simulé est la solution de l'équation de convection-dispersion suivante :

$$\frac{\partial u}{\partial t} + ab^{1/a} u^{a-1/a} \frac{\partial u}{\partial z} = v_\theta ab^{1/a} u^{a-1/a} \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \quad (5)$$

où

$u(z, t)$ = flux d'eau simulé à une profondeur z et à un instant t (mm h^{-1})

a = indice de distribution du flux dans la macroporosité

b = équivalent à une conductance (mm h^{-1})

v_θ = coefficient dispersif (mm)

u est la variable du problème, alors que a , b , et v_θ sont les paramètres à optimiser. L'équation (5) est résolue numériquement avec un schéma implicite aux différences finies pour les conditions initiales et aux limites suivantes :

$$\begin{cases} u(z, t) = 0, & z > 0, \quad t = 0 \\ u(z, t) = u_{in}(t), & z = 0, \quad t > 0 \end{cases} \quad (6)$$

où $u_{in}(t)$ est l'impulsion d'un créneau de flux volumique d'eau, d'intensité q_0 et d'une durée t_0 (colonne initialement drainée, de longueur finie, sollicitée par un flux d'eau en forme de créneau à la surface).

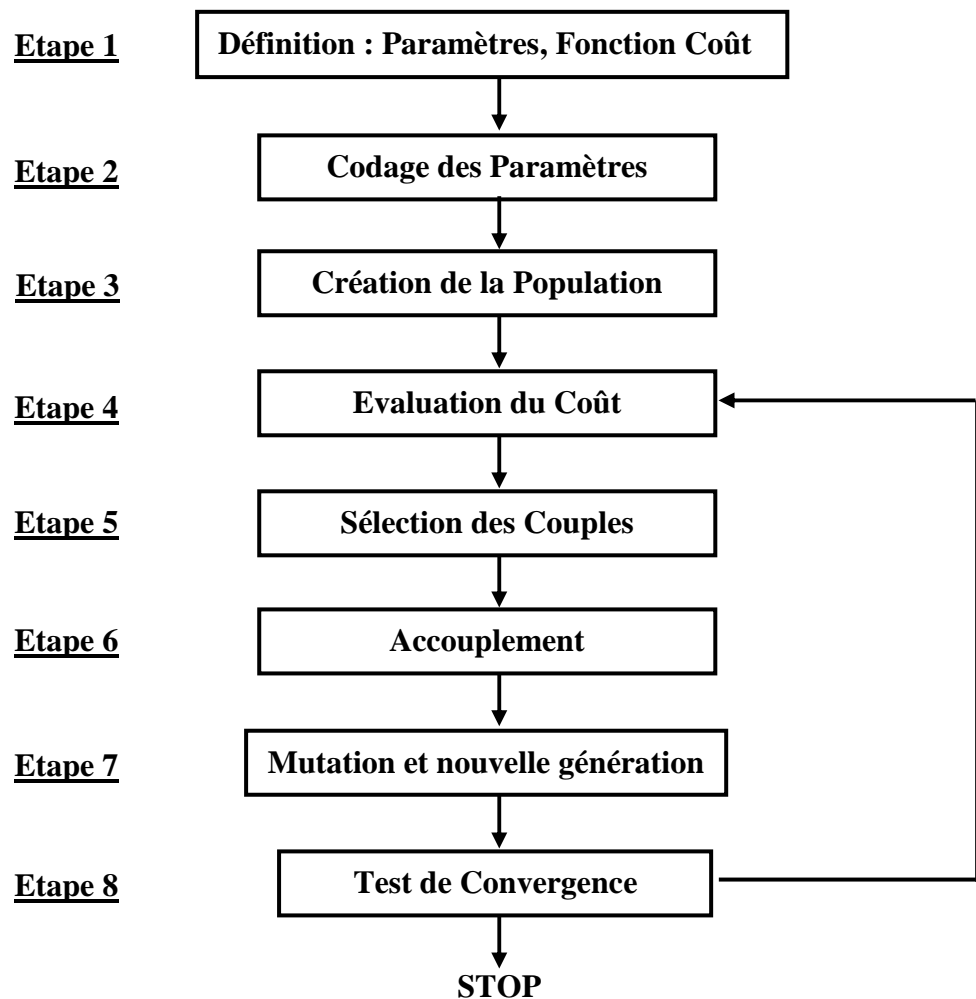


Figure 6 : Diagramme des différentes composantes de l'algorithme génétique binaire.

Etape 1 : Paramètres, fonction coût

La courbe de modélisation de u (flux simulé) est comparée aux points expérimentaux (flux observé). La comparaison est faite en calculant la racine carrée de l'écart absolu entre flux observé et flux simulé. Plus cette valeur est petite, plus la simulation est proche des données expérimentales. A chaque jeu de paramètres (a, b, v_θ) est associée une courbe de simulation de u . Le but de l'optimisation est de trouver le jeu de paramètre optimal $(a_{optimum}, b_{optimum}, v_{\theta optimum})$ qui donne la courbe simulée la plus proche des observations expérimentales. Il s'agit donc de minimiser la fonction coût suivante :

$$f(a, b, v_\theta) = \frac{100}{\bar{u}} \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \sqrt{|u_i - \tilde{u}_i|} \quad (7)$$

où

$f(a, b, v_\theta)$ = coût associé au jeu de paramètre (a, b, v_θ) ,

N = nombre d'observations expérimentales,

u_i = flux expérimental drainé en sortie de colonne (flux observé),

\bar{u} = moyenne des flux expérimentaux,

\tilde{u}_i = flux prédit en sortie de colonne (flux simulé).

La fonction objective (fonction coût) à minimiser prend en considération la racine carrée des écarts et non pas le carré des écarts (classique) entre valeur observée et valeur simulée. Ce choix a été fait pour diminuer l'influence que peuvent avoir certains écarts sur la fonction coût. En effet, durant les phases transitoires (phase I et phase III de l'hydrogramme), le flux d'eau subit des grandes variations en un intervalle de temps très petit. Les écarts entre les points expérimentaux et la courbe simulée pendant ces phases transitoires sont les plus importants. Bien que leur nombre soit petit, ces quelques écarts contribuent beaucoup à la fonction coût. En les élevant au carré, ils augmentent énormément le coût et forcent l'algorithme à choisir des paramètres qui conduisent à des courbes simulées qui s'approchent de plus en plus de certains points tout en s'éloignant de l'ensemble des points expérimentaux. Ainsi, l'allure générale de l'expérience d'infiltration ne serait pas bien reproduite. Aussi, il faut abaisser la contribution des grands écarts à la fonction coût en prenant la racine carrée des écarts comme base d'évaluation du coût.

L'équation (5) est résolue numériquement à l'aide de la méthode des différences finies avec discrétisation explicite des dérivées spatiales, ce qui fait que la variable u ne possède pas une dérivée analytique bien définie. Le nombre de paramètres à optimiser étant trois (a , b , et v_θ), la surface coût ne peut être visualisée : son comportement ainsi que sa complexité sont complètement ignorés. D'où l'intérêt d'utiliser un algorithme génétique pour l'optimisation des paramètres puisque celui-ci ne demande pas l'évaluation de la fonction dérivée et peut manipuler les surfaces coûts complexes.

Etape 2 : Codage des paramètres

L'AG commence par définir un *chromosome* ou un jeu de paramètres à optimiser :

$$chromosome = [a, b, v_\theta] \quad (8)$$

Chaque *chromosome* possède un coût qui est trouvé en évaluant la fonction coût, $f(a, b, v_\theta)$:

$$coût = f(chromosome) = f(a, b, v_\theta) \quad (9)$$

Un chromosome est choisit à partir d'un espace de paramètres qui définit toutes les valeurs possibles que peut prendre chacun des paramètres et les arrangements (ou jeux de paramètres) qui peuvent être déduits. L'espace de paramètres peut être assez large, mais il doit être en même temps limité afin que l'AG puisse fonctionner. Les paramètres du problème peuvent prendre n'importe quelle valeur réelle positive. Pour pouvoir limiter l'espace de paramètres, des intervalles ont été définis pour chacun d'entre eux. Les bornes des intervalles ont été choisies de façon à ce que les valeurs des paramètres soient du même ordre de grandeur que les valeurs déjà présentes dans la littérature (Di Pietro et al., 2003 ; Rousseau, 2003) et qui conduisent à des courbes simulées plus ou moins proches des observations expérimentales. On vérifie qu'à l'intérieur de ces intervalles, des valeurs 'très proches' produisent quasiment les mêmes simulations. Pour empêcher l'AG d'effectuer des évaluations insignifiantes et inutiles, les intervalles ont été sous divisés de façon à ce que la courbe de simulation soit sensible au changement "d'un pas" de la valeur du paramètre. Les intervalles de valeurs suivants ont été adoptés pour les différents paramètres :

$$\begin{cases} a \in [1, 4.1] & \text{avec un pas de } 0.1 \\ b \in [10^5, 10^{11.2}] & \text{avec un pas de } 10^{0.2} \text{ (mm h}^{-1}\text{)} \\ v_\theta \in [150, 900] & \text{avec un pas de } 50 \text{ (mm)} \end{cases} \quad (10)$$

Dans l'espace de paramètres ainsi défini, le paramètre a peut prendre 32 valeurs, le paramètre b 32 valeurs, et le paramètre v_θ 16 valeurs. Ce qui donne $32 \times 32 \times 16 = 16384$ chromosomes

(ou jeux de paramètres) possibles. Les algorithmes génétique existent sous deux versions : AG binaires et AG réels. Les AG binaires sont très bien adaptés aux problèmes à paramètres discrets (les paramètres ne peuvent prendre que quelques valeurs bien précises). Par contre, les AG réels sont très bien adaptés aux problèmes à paramètres continus (les paramètres peuvent prendre n'importe quelle valeur réelle de l'espace). L'AG binaire est donc plus commode pour l'optimisation des paramètres hydrodynamiques a , b , et v_θ .

L'algorithme génétique binaire utilise un codage des paramètres qui repose sur la représentation en système binaire. L'AG binaire travaille ainsi avec des bits : des 0 et des 1. En base 2, chaque nombre peut être écrit comme étant la somme de différentes puissances de 2. Le nombre 19, par exemple, est représenté de la manière suivante :

$$\begin{array}{ccccccccc}
 19 & \equiv & [1 & 0 & 0 & 1 & 1] \\
 & & \downarrow & \downarrow & \downarrow & \downarrow & \downarrow \\
 & & 2^4 & 2^3 & 2^2 & 2^1 & 2^0 \\
 \\
 19 & = & \mathbf{1} \times 2^4 & + \mathbf{0} \times 2^3 & + \mathbf{0} \times 2^2 & + \mathbf{1} \times 2^1 & + \mathbf{1} \times 2^0 \\
 \\
 & = & 16 & + & 0 & + & 0 & + & 2 & + & 1
 \end{array}$$

La représentation binaire d'un paramètre est appelée *gène*. Le nombre de bits (ou la longueur) d'un *gène* est nommé $N_{gène}$. Le paramètre a peut prendre 32 valeurs possibles dans l'intervalle $[1, 4.1]$ en variant par des pas de 0.1. A chacune de ces valeurs sera associé un *gène*, ce qui donne 32 *gène-a* possibles. La valeur $a = 1$ est ainsi représentée par *gène-a* = [00000], et la valeur $a = 4.1$ est représentée par *gène-a* = [11111]. Le paramètre b peut prendre 32 valeurs possibles dans l'intervalle $[10^5, 10^{11.2}]$ en variant par des pas de $10^{0.2}$ (mm h⁻¹), ce qui conduit à 32 *gène-b* possibles. La valeur $b = 10^{5.2}$ (mm h⁻¹) est par exemple représentée par *gène-b* = [00001]. Le paramètre v_θ peut prendre 16 valeurs possibles dans l'intervalle $[150, 900]$ en variant par des pas de 50 (mm), ce qui conduit à 16 *gène-v_θ* possibles. La valeur $v_\theta = 850$ (mm) est ainsi représentée par le *gène-v_θ* = [1110]. Il s'ensuit que $N_{gène-a} = 5$, $N_{gène-b} = 5$, et $N_{gène-v_\theta} = 4$.

Dans l'AG binaire, un jeu de paramètres $[a, b, v_\theta]$ est donc représenté par un chromosome formé par l'association de trois gènes :

$$chromosome = \left[\underbrace{11011}_{gene-a} \underbrace{00101}_{gene-b} \underbrace{0011}_{gene-v_\theta} \right]$$

Un chromosome a un nombre total de $N_{bits} = N_{gène-a} + N_{gène-b} + N_{gène-v_\theta} = 5 + 5 + 4 = 14$ bits. Les ‘opérateurs génétiques’ seront par la suite appliqués aux chromosomes au lieu d’être appliqués aux paramètres eux mêmes.

Etapes 3 et 4 : Création de la population et évaluation du coût

L’AG considère un groupe de chromosomes appelé population initiale. Une population initiale contient N_{pop} chromosomes et constitue une matrice de N_{pop} lignes et N_{bits} colonnes, remplie par des 0 et des 1 générés de manière aléatoire. Chaque ligne de la matrice est un chromosome. Les chromosomes correspondent à des valeurs discrètes des paramètres a , b , et v_θ . Après décodage des chromosomes, les paramètres correspondants passent à la fonction objective pour l’évaluation du coût. Le Tableau 1 montre, dans le cadre d’optimisation des paramètres a , b , et v_θ de l’expérience d’infiltration Colonne A #3 (Majdalani et al., 2007a), une population initiale de 8 chromosomes avec les jeux de paramètres et les coûts associés.

| <i>Chromosome</i> | <i>a</i> | <i>b</i> (mm h ⁻¹) | <i>v_θ</i> (mm) | Coût |
|-------------------|----------|-----------------------------------|------------------------------|---------|
| 11111101110000 | 4.1 | 10 ^{9.6} | 150 | 19.0261 |
| 10110010001110 | 3.2 | 10 ^{6.6} | 850 | 16.6466 |
| 00010000100100 | 1.2 | 10 ^{5.4} | 350 | 11.9489 |
| 11101100111100 | 3.9 | 10 ^{8.8} | 750 | 10.4628 |
| 01011100101000 | 2.1 | 10 ^{8.6} | 550 | 11.9393 |
| 01101100111101 | 2.3 | 10 ^{8.8} | 800 | 11.9261 |
| 01010000111001 | 2 | 10 ^{5.6} | 600 | 9.95688 |
| 01001010110100 | 1.9 | 10 ^{7.2} | 350 | 11.8804 |

Tableau 1 : Optimisation des paramètres a , b , et v_θ de l’expérience d’infiltration Colonne A #3 : population initiale de 8 *chromosomes*, avec les paramètres et les coûts associés.

Etape 5 : La sélection naturelle

La survie des meilleurs éléments se traduit par le rejet des chromosomes ayant un coût élevé. Premièrement, les N_{pop} coût et les chromosomes associés sont ordonnés du plus petit au plus grand coût. Ensuite, seuls les meilleurs sont sélectionnés pour continuer, tandis que le reste est rejeté. Le taux de sélection, $T_{sélection}$, est la fraction de N_{pop} qui survit pour la prochaine étape d’accouplement. A chaque génération, le nombre de chromosomes retenu est :

$$N_{gardé} = T_{sélection} \times N_{pop} \quad (11)$$

La sélection naturelle s'opère à chaque génération ou itération de l'algorithme. Des N_{pop} chromosomes d'une génération, seuls les meilleurs $N_{gardé}$ survivent pour l'accouplement, et les mauvais $N_{pop} - N_{gardé}$ seront remplacés par de nouveaux enfants.

Le choix du nombre de chromosomes à garder est arbitraire. Garder un petit nombre limite la propagation de bons éléments. Par contre, garder un grand nombre permet aux moins performants de transmettre leurs traits à la prochaine génération. Dans le processus de sélection naturelle, le taux de sélection est généralement considéré à 50 % ($T_{sélection} = 0.5$). Dans l'exemple traité ici, $N_{pop} = 8$. Avec un taux de sélection de 50 %, $N_{gardé} = 4$. Le Tableau 2 montre les résultats de la sélection naturelle classés par ordre croissant du coût. Par la suite, les quatre chromosomes ayant les coûts les plus bas survivront pour la génération suivante et deviennent quatre parents, nommés du plus bas au plus haut coût : *parent(1)*, *parent(2)*, *parent(3)*, et *parent(4)*. Deux chromosomes parents sont sélectionnés pour produire deux nouveaux enfants qui remplaceront les chromosomes rejetés. Ainsi, *parent(1)* et *parent(2)* produiront *enfant(1)* et *enfant(2)*, et *parent(3)* et *parent(4)* produiront *enfant(3)* et *enfant(4)*. Avec quatre nouveaux enfants, la population regagne sa dimension habituelle de huit membres. Reste à savoir comment les enfants sont produits : c'est par l'accouplement des parents.

| <i>Chromosome</i> | <i>a</i> | <i>b</i> (mm h ⁻¹) | v_{θ} (mm) | Coût |
|-------------------|----------|-----------------------------------|----------------------|---------|
| 01010000111001 | 2 | $10^{5.6}$ | 600 | 9.95688 |
| 11101100111100 | 3.9 | $10^{8.8}$ | 750 | 10.4628 |
| 01001010110100 | 1.9 | $10^{7.2}$ | 350 | 11.8804 |
| 01101100111101 | 2.3 | $10^{8.8}$ | 800 | 11.9261 |

Tableau 2 Les chromosomes survivants après une sélection de 50 % classés du plus bas au plus haut coût.

Etape 6 : L'accouplement

L'accouplement est le processus de création de deux enfants à partir de deux parents suivant un certain schéma de combinaison. Le schéma utilisé est le Single-Point Crossover. Il consiste à choisir aléatoirement un point d'assortiment (crossover point) entre le premier et le dernier bit des chromosomes parents. D'abord, *parent(1)* donne à *enfant(1)* son code binaire situé à gauche du point d'assortiment. De la même manière, *parent(2)* donne à *enfant(2)* son code binaire situé à gauche du point d'assortiment. En suite, *parent(1)* donne à *enfant(2)* son code binaire situé à droite du point d'assortiment, et *parent(2)* donne à *enfant(1)* son code binaire situé à droite du point d'assortiment (Figure 7). Par conséquent, l'enfant contient des portions

des codes binaires des deux parents. Les parents auront ainsi produit $N_{pop} - N_{gardé}$ enfants, et la population de chromosomes revient à N_{pop} . Le Tableau 3 montre les résultats du premier processus d'accouplement (au cours de la population initiale). Le premier couple de parents (chromosomes 1 et 2) possède un point d'assortiment situé entre les bits 2 et 3 : il produira les enfants 1 et 2. Le second couple de parents (chromosomes 3 et 4) possède un point d'assortiment situé entre les bits 3 et 4 : il produira les enfants 3 et 4.

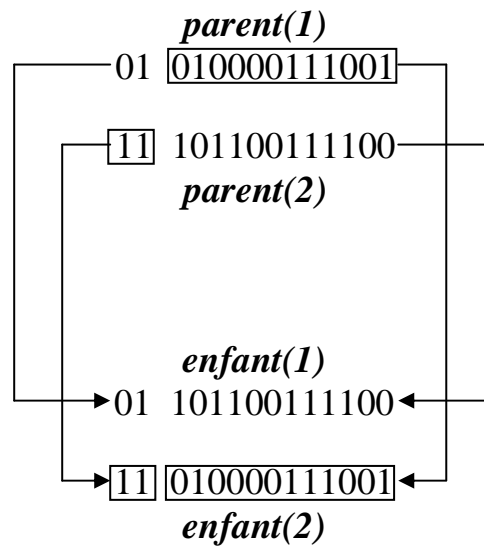


Figure 7 : Deux parents s'accouplent pour produire deux enfants.

| <i>Chromosome</i> | <i>Famille</i> | <i>Code Binaire</i> |
|-------------------|------------------|---------------------|
| 1 | <i>parent(1)</i> | 01010000111001 |
| 2 | <i>parent(2)</i> | 11101100111100 |
| 3 | <i>parent(3)</i> | 01001010110100 |
| 4 | <i>parent(4)</i> | 01101100111101 |
| 5 | <i>enfant(1)</i> | 01101100111100 |
| 6 | <i>enfant(2)</i> | 11010000111001 |
| 7 | <i>enfant(3)</i> | 01001100111101 |
| 8 | <i>enfant(4)</i> | 01101010110100 |

Tableau 3 : Résultats du premier processus d'accouplement.

Etape 7 : La mutation et la nouvelle génération

Des mutations aléatoires changent un certain pourcentage de bits dans la liste de chromosomes. La mutation est la seconde façon par laquelle un AG explore la surface coût. Elle peut introduire des traits qui n'existent pas dans la population originale et empêche l'algorithme de converger rapidement avant avoir effectué un échantillonnage complet de la surface coût. Une mutation simple consiste à changer le 1 en 0 et vice versa. Les points de mutation sont sélectionnés d'une manière aléatoire à partir $N_{pop} \times N_{bits}$ bits de la matrice population. L'augmentation du nombre de mutations augmente la liberté de l'algorithme à chercher à l'extérieur de la région d'espace actuel. Les mutations se font à chaque génération sauf la dernière : elles n'affectent pas la dernière itération. En plus, la meilleure solution de chaque génération ne subit pas la mutation afin de permettre la propagation des solutions *élites*.

Dans l'exemple de la Colonne A #3, un taux de mutation de 10 % ($\mu = 0.10$) a été adopté, sauf pour le meilleur chromosome. Dans ce cas, le nombre de mutations est donné par :

$$\#mutations = \mu \times (N_{pop} - 1) \times N_{bits} = 0.10 \times 7 \times 14 = 9.8 \approx 10 \quad (12)$$

Des couples de nombres entiers sont générés d'une manière aléatoire : (8, 10), (3, 9), (5, 1), (3, 2), (8, 5), (5, 14), (5, 10), (4, 12), (7, 13), et (6, 1). Ces couples correspondent au numéro de ligne et de colonne du bit qui va subir la mutation. Le premier couple aléatoire étant (8, 10), le bit situé à la ligne 8 et à la colonne 10 dans la matrice de population subira la mutation :

$$011010101\underline{1}0100 \Rightarrow 011010101\underline{0}0100$$

Les bits ayant subi la mutation paraissent en gras italique dans le Tableau 4.

| Population après Accouplement | Population après Mutation | Nouveau Coût |
|----------------------------------|------------------------------|--------------|
| 01010000111001 | 01010000111001 | 9.95688 |
| 11101100111100 | 11101100111100 | 10.4628 |
| 01001010110100 | <i>00001010010100</i> | 11.9529 |
| 01101100111101 | 01101100111 <i>001</i> | 11.9186 |
| 01101100111100 | <i>11101100101101</i> | 11.4981 |
| 11010000111001 | <i>01010000111001</i> | 9.95688 |
| 01001100111101 | 010011001111 <i>11</i> | 11.9516 |
| 01101010110100 | 0110 <i>0010100100</i> | 11.2564 |

Tableau 4 : Résultats de la mutation de la population initiale et les nouveaux coûts associés.

Etape 8 : Le test de convergence

Après avoir effectué les mutations, les nouveaux coûts associés aux enfants et aux chromosomes ayant subi la mutation sont calculés (troisième colonne du Tableau 4). En classant les nouveaux coûts du plus bas au plus haut, une nouvelle population (population 1) est obtenue (Tableau 5). Celle-ci servira de base pour la génération suivante (génération 2). Le processus déjà décrit sera répété. Les quatre derniers chromosomes sont rejetés et sont remplacés par quatre enfants provenant des quatre premiers chromosomes parents. Autres bits aléatoires sont sélectionnés parmi les sept derniers chromosomes pour subir la mutation. Après classement du coût, la population est prête pour la génération 3 (Tableau 6). De nouveau, la population subit l'accouplement, la mutation, et le classement. Le résultat à la fin de la troisième génération (début de la quatrième génération) est montré en Tableau 7.

| Chromosomes | Coût |
|----------------|---------|
| 01010000111001 | 9.95688 |
| 01010000111001 | 9.95688 |
| 11101100111100 | 10.4628 |
| 01100010100100 | 11.2564 |
| 11101100101101 | 11.4981 |
| 01101100111001 | 11.9186 |
| 01001100111111 | 11.9516 |
| 00001010010100 | 11.9529 |

Tableau 5 : La nouvelle population 1 classée au début de la deuxième génération.

| Chromosomes | Coût |
|----------------|---------|
| 10010010100100 | 8.95219 |
| 01011000111001 | 9.47809 |
| 01010000101001 | 9.61372 |
| 01010000111001 | 9.95688 |
| 01100010100000 | 10.9531 |
| 01010001110001 | 10.9619 |
| 10101100111100 | 11.1482 |
| 01101101111100 | 11.9449 |

Tableau 6 : La nouvelle population 2 classée au début de la troisième génération.

| Chromosomes | Coût |
|----------------|---------|
| 01010000100001 | 8.80267 |
| 10010010100100 | 8.95219 |
| 01011000111001 | 9.47809 |
| 01010000111001 | 9.95688 |
| 01000000101001 | 10.7636 |
| 01010010100100 | 11.7147 |
| 01010010111101 | 11.8781 |
| 00011100111001 | 11.9529 |

Tableau 7 : La population 3 obtenue après accouplement, mutation, et classement à la fin de la troisième génération.

La convergence d'un algorithme est généralement liée à l'obtention d'une solution acceptable. Dans notre problème, le comportement de la surface coût (sa complexité et le nombre de minimums qu'elle contient) est complètement inconnu. Par suite, il serait difficile de fixer un critère statistique pour arrêter l'algorithme. C'est pour cette raison que nous avons choisi d'arrêter l'algorithme après un certain nombre de générations. Ce dernier doit être suffisamment large pour permettre une bonne exploration de l'espace de paramètres, et assurer ainsi notre connaissance de la surface coût. Par contre, le nombre de génération choisi comme critère de convergence doit être suffisamment petit pour diminuer le temps de calcul. Un compromis doit donc être fait entre ces deux limites. Nous avons choisi d'arrêter l'algorithme au bout de 30 générations. Le nombre d'évaluations de la fonction coût était 162 fois, ce qui fait : $162 / (32 \times 32 \times 16) \times 100 = 0.988 \%$ de l'espace de paramètres. Le temps de calcul correspondant était 135 minutes (deux heures et quart). L'évolution du coût minimum à travers les différentes générations est montrée en Figure 8. Les paramètres optimums associés au dernier coût minimum (coût optimum) trouvé par l'AG binaire, ainsi que l'hydrogramme simulé correspondant, sont donnés en Figure 9.

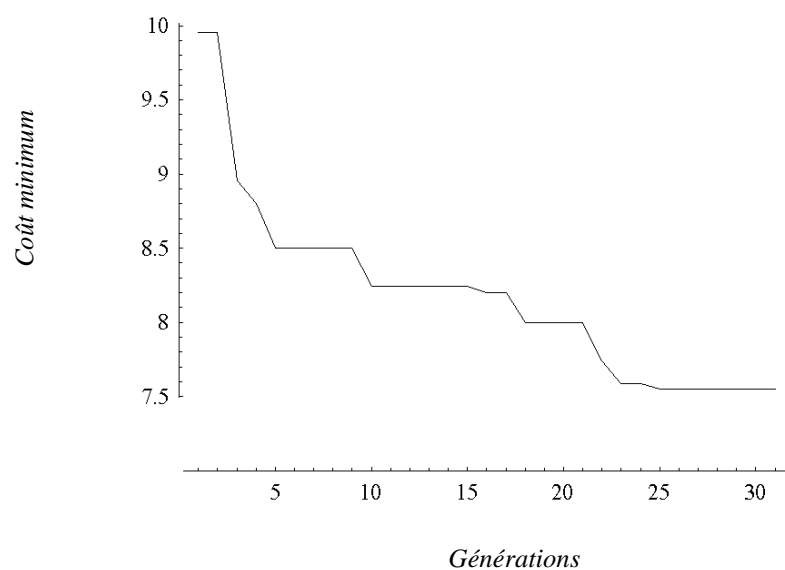


Figure 8 : Evolution du coût minimum à travers les différentes générations.

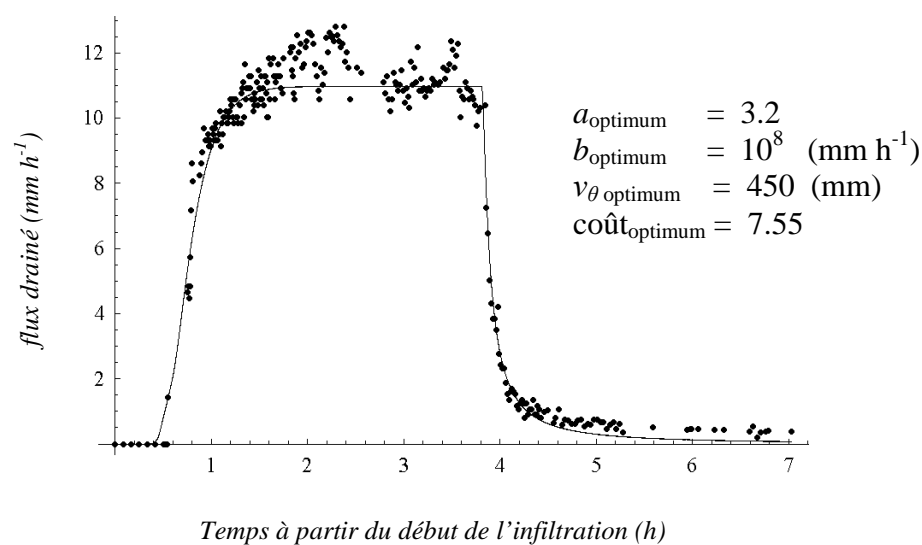
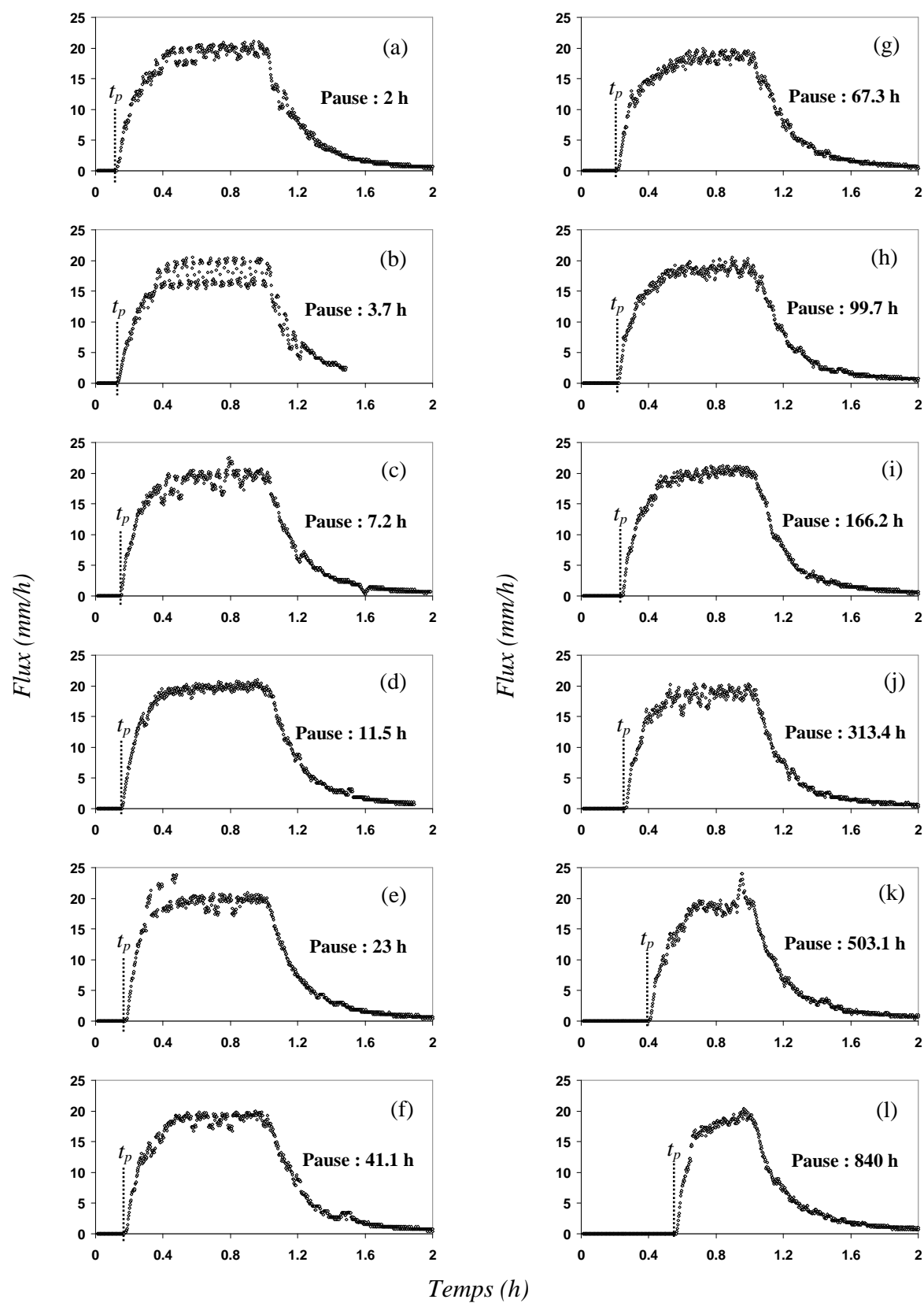


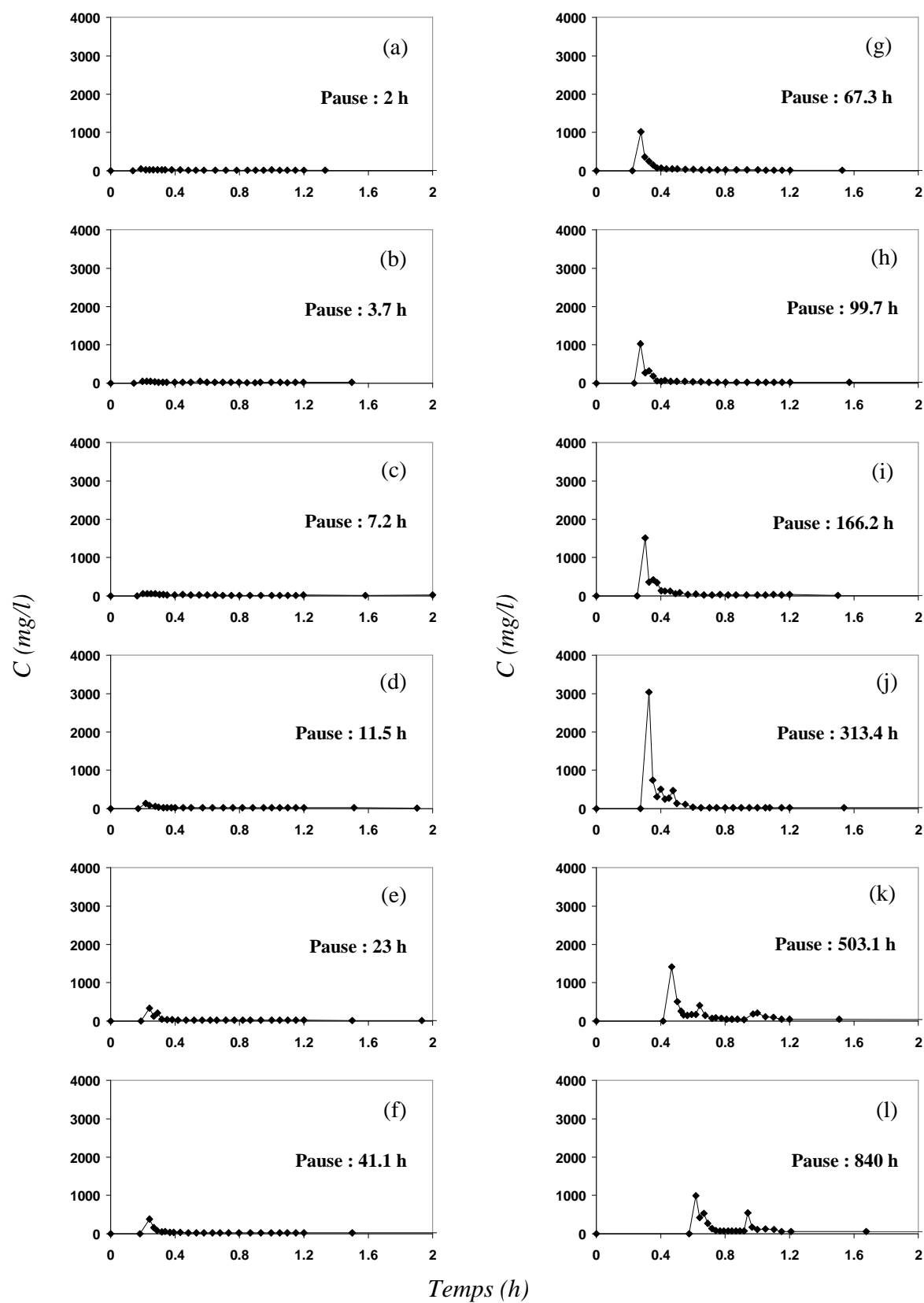
Figure 9 : Simulation du flux d'eau drainée de la Colonne A #3 correspondant aux paramètres et coût optimums trouvés par l'AG binaire.

ANNEXE II

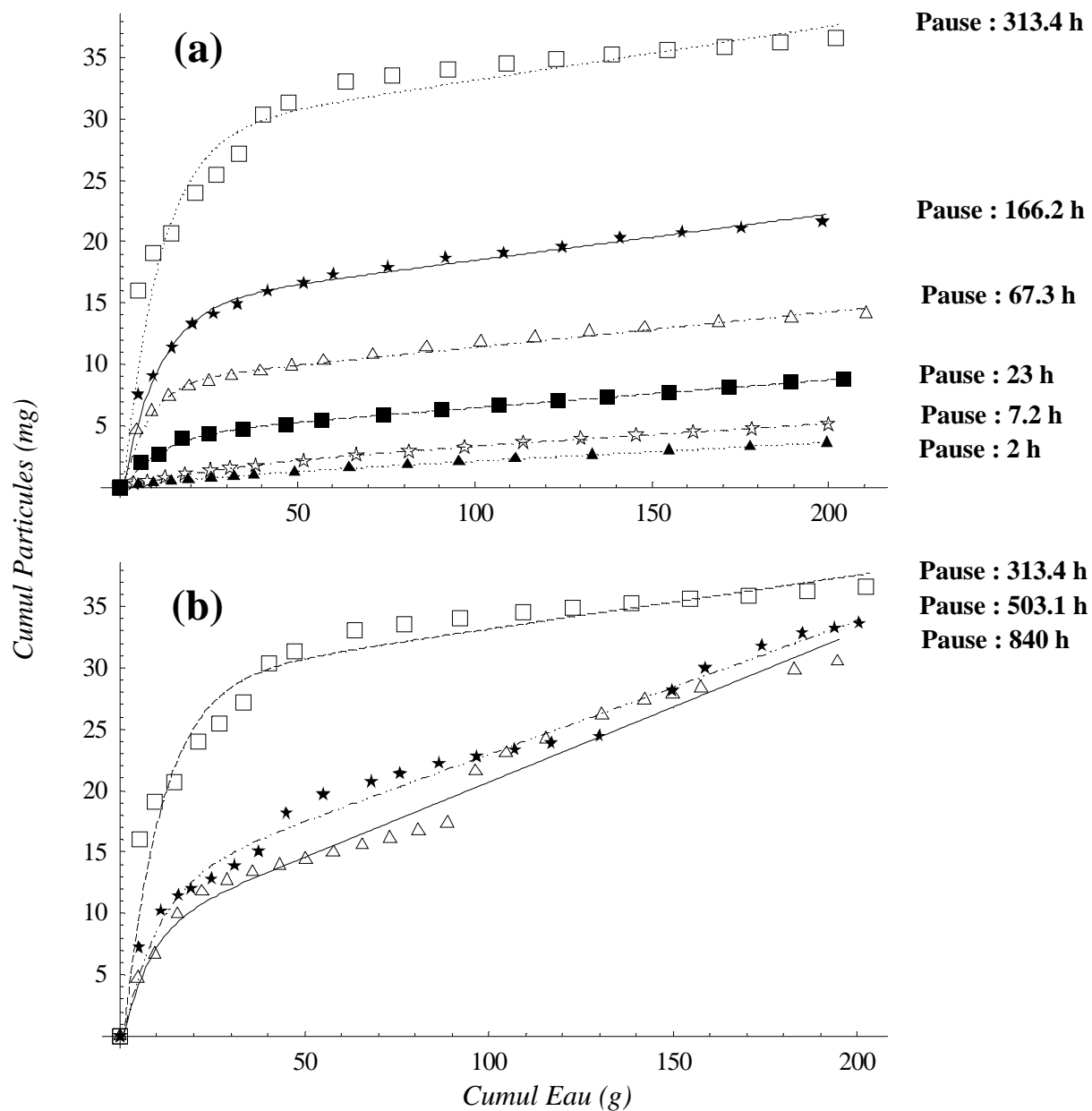
Figures complémentaires



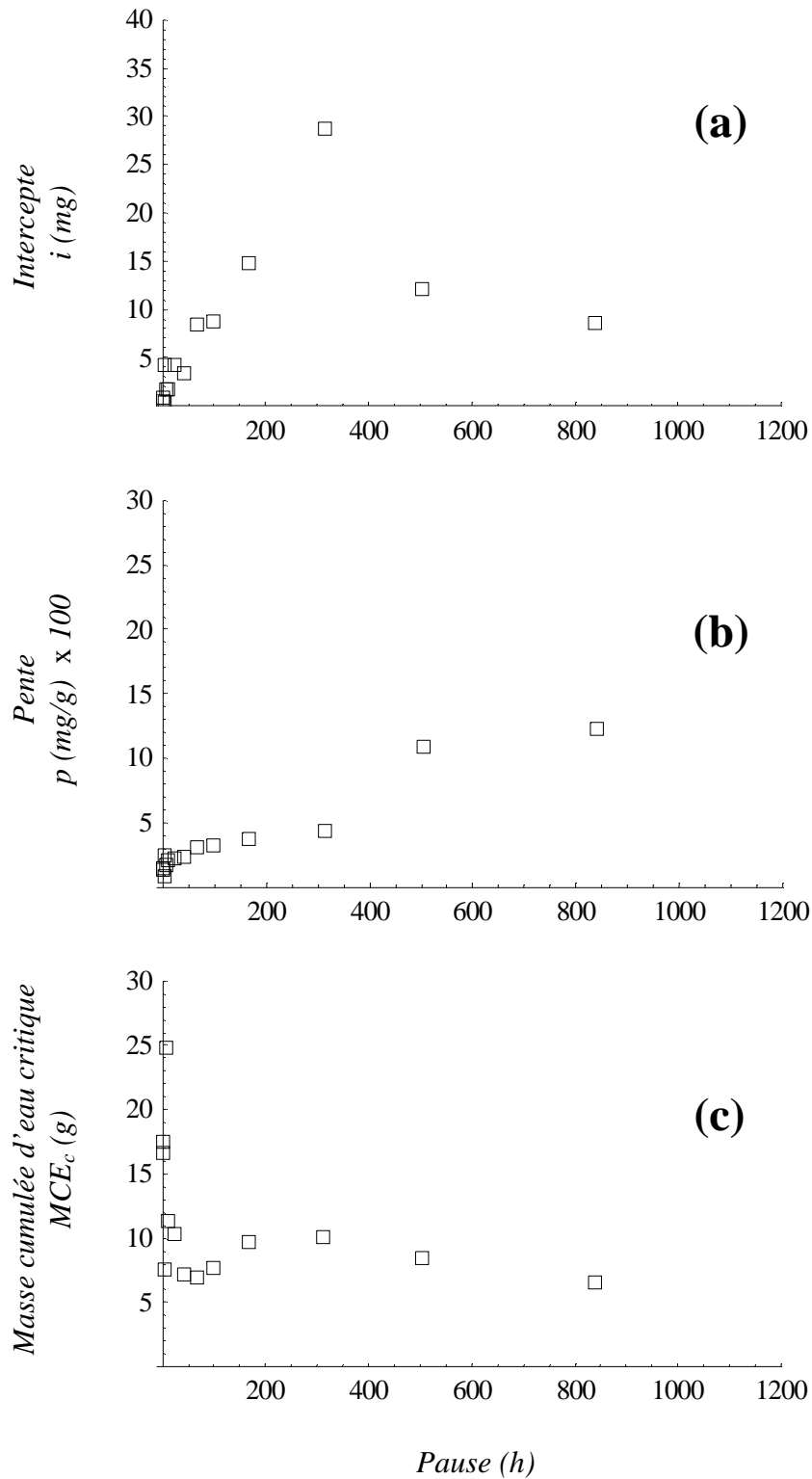
Annexe 2.1 : Ensemble des hydrogrammes pour différentes durées de pause testées sur la colonne G bis (2^{ème} série de pauses) allant de 2 h à 840 h. Le temps de percée t_p est compté à partir du début de l'irrigation et il correspond à la sortie de la première goutte d'eau (arrivée du front d'imbibition) en bas de la colonne.



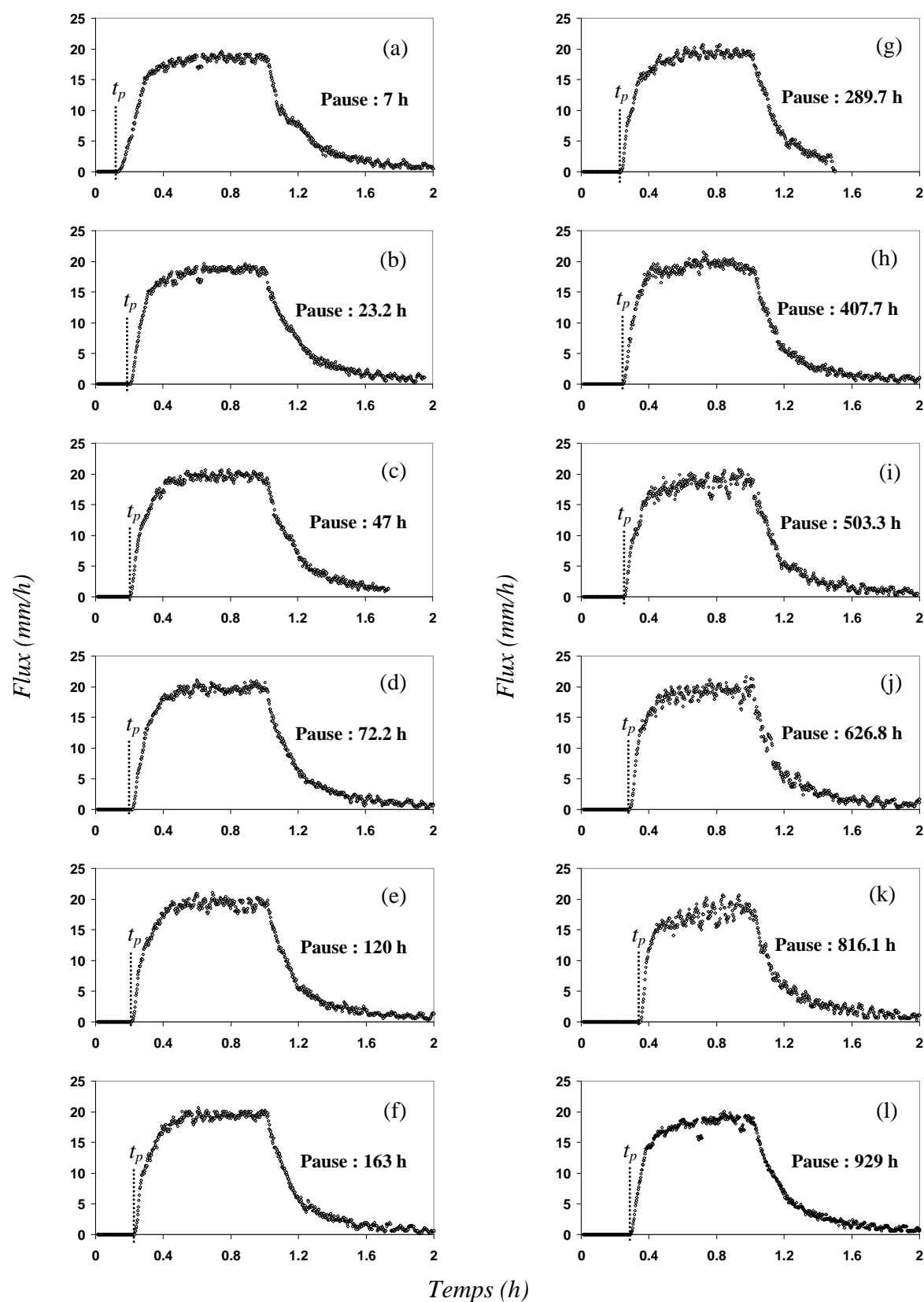
Annexe 2.2 : Ensemble des particulogrammes pour différentes durées de pause testées sur la colonne G bis (2^{ème} série de pauses) allant de 2 h à 840 h.



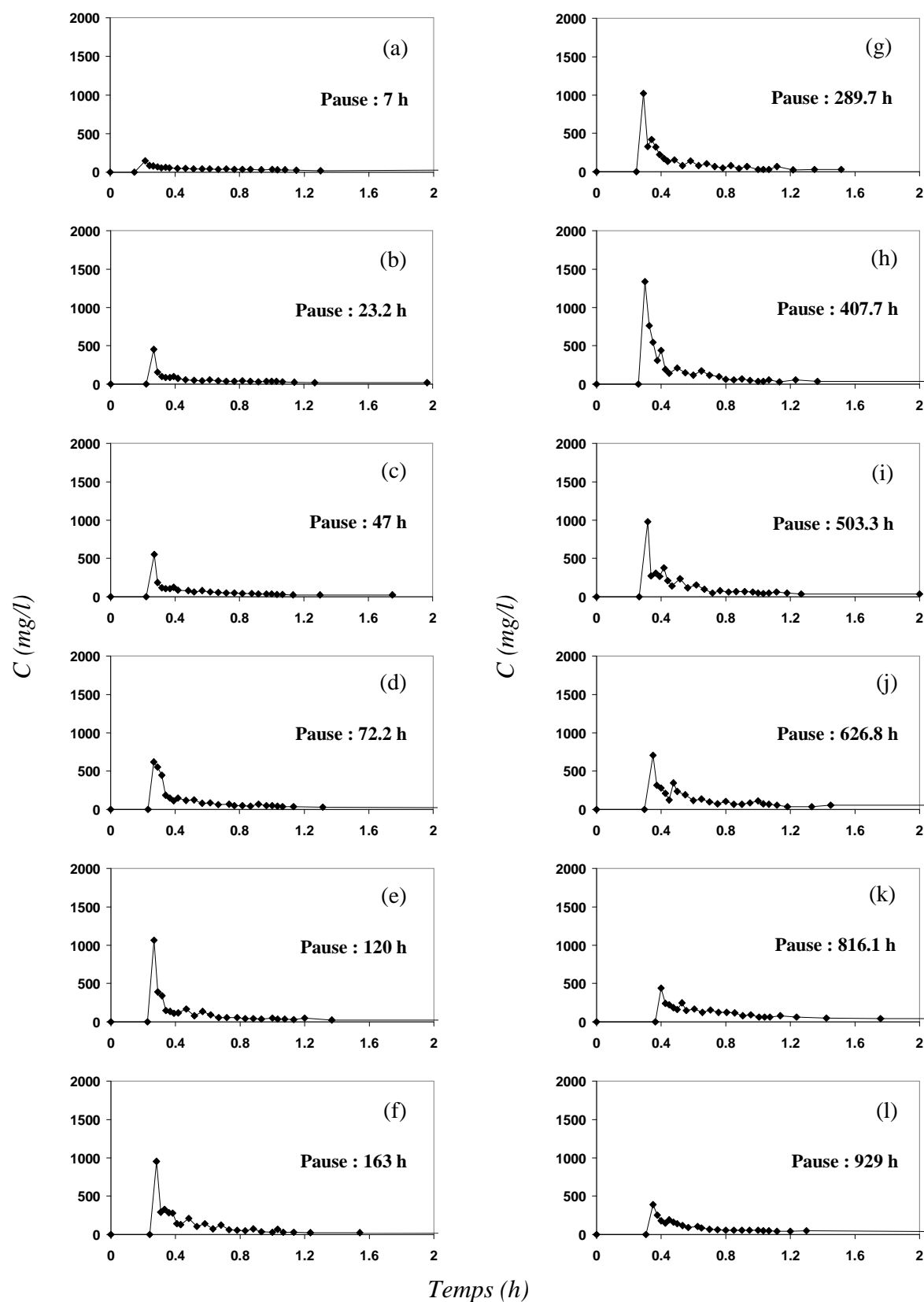
Annexe 2.3 : Ensemble des courbes cumulées pour différentes durées de pause testées sur la colonne G bis (2^{ème} série de pause). (a) Durées de pause allant de 2 h à 313.4 h. (b) Durées de pauses allant de 313.4 h à 840 h. Les lignes pointillées sont les courbes simulées selon l'expression (1). L'erreur sur la masse cumulée de particules a été estimée en prenant en considération l'erreur de mesure sur la balance, l'erreur de mesure avec le spectrophotomètre, et l'erreur sur la régression linéaire d'étalonnage de celui-ci. La somme de toutes ces erreurs à la fin de l'événement pluvieux était inférieure à 1 mg.



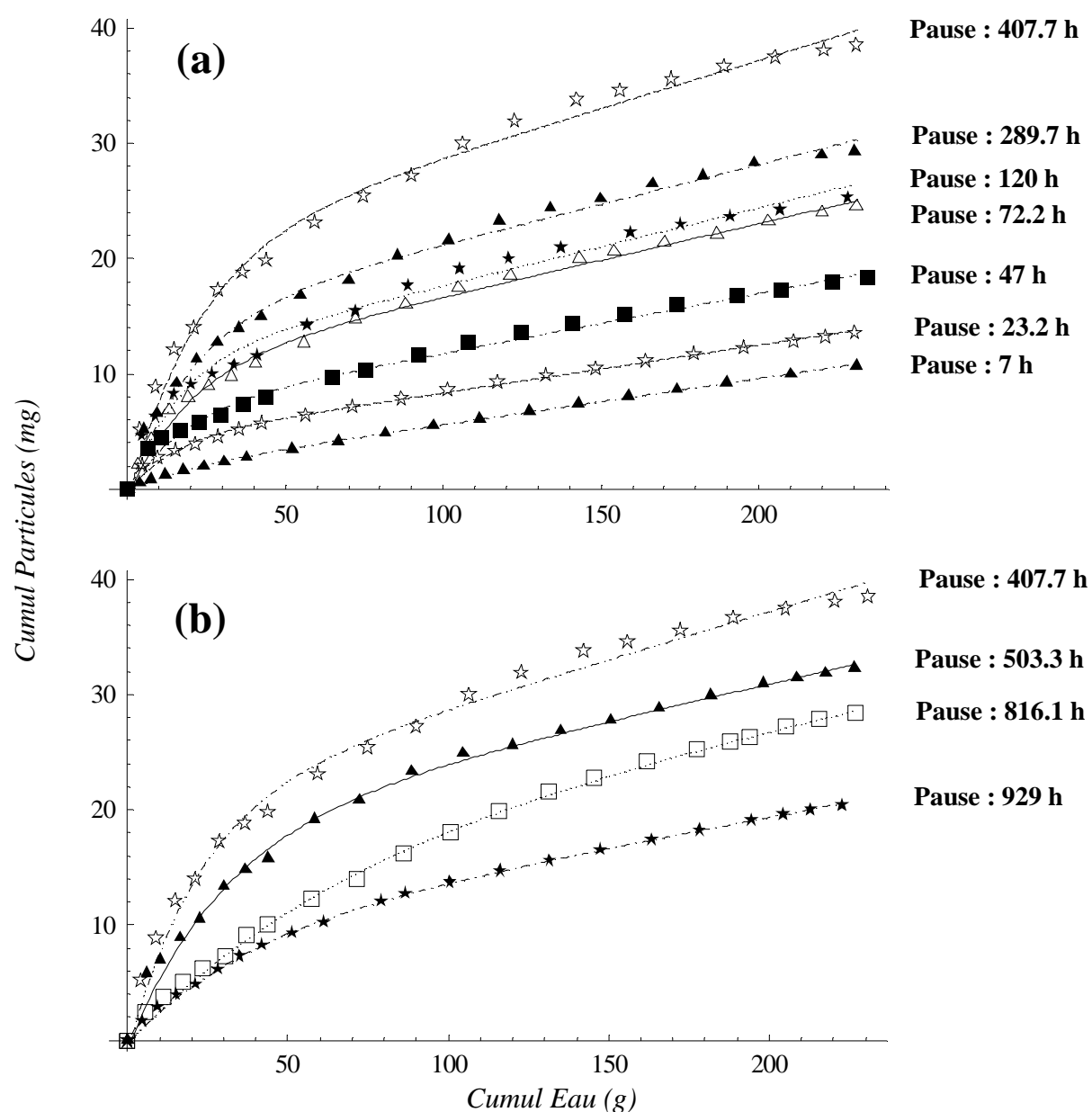
Annexe 2.4 : Paramètres correspondant à la simulation des courbes cumulées selon l'expression mathématique (1), et ceci pour les différentes pauses testées sur la Colonne G bis (2^{ème} série de pauses). (a) L'intercepte i (mg) représente la contribution du pic du particulogramme à l'ensemble des particules mobilisées. (b) La pente p (mg/g) représente la contribution de la queue du particulogramme à l'ensemble des particules mobilisées. (c) La masse cumulée d'eau critique MCE_c (g) représente la quantité d'eau qui assure le passage du comportement exponentiel au comportement linéaire (Figure III.3.3)



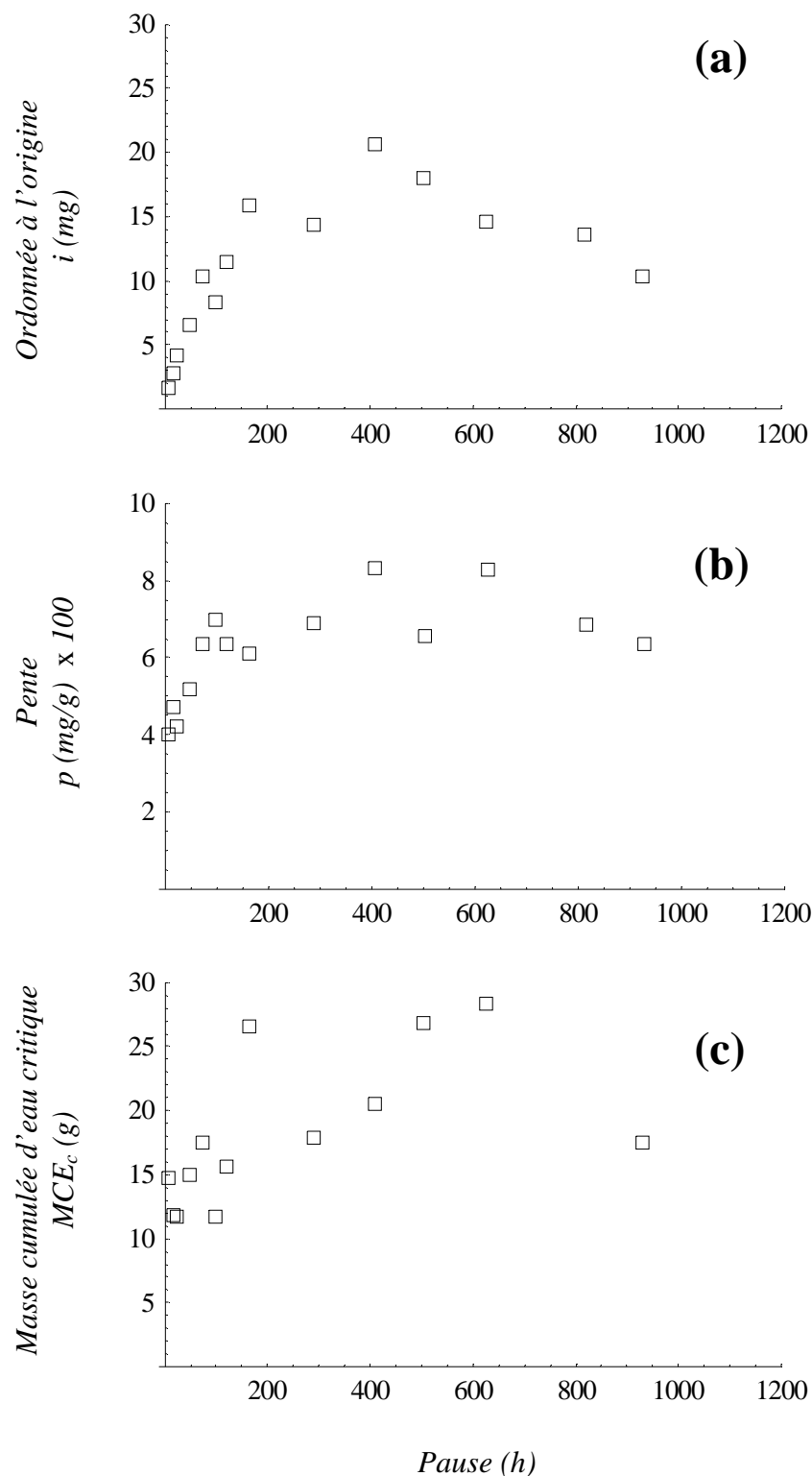
Annexe 2.5 : Ensemble des hydrogrammes de la colonne E pour des pauses allant de 7 h à 929 h. Le temps de percée t_p est compté à partir du début de l'irrigation et il correspond à la sortie de la première goutte d'eau (arrivée du front d'imbibition) en bas de la colonne.



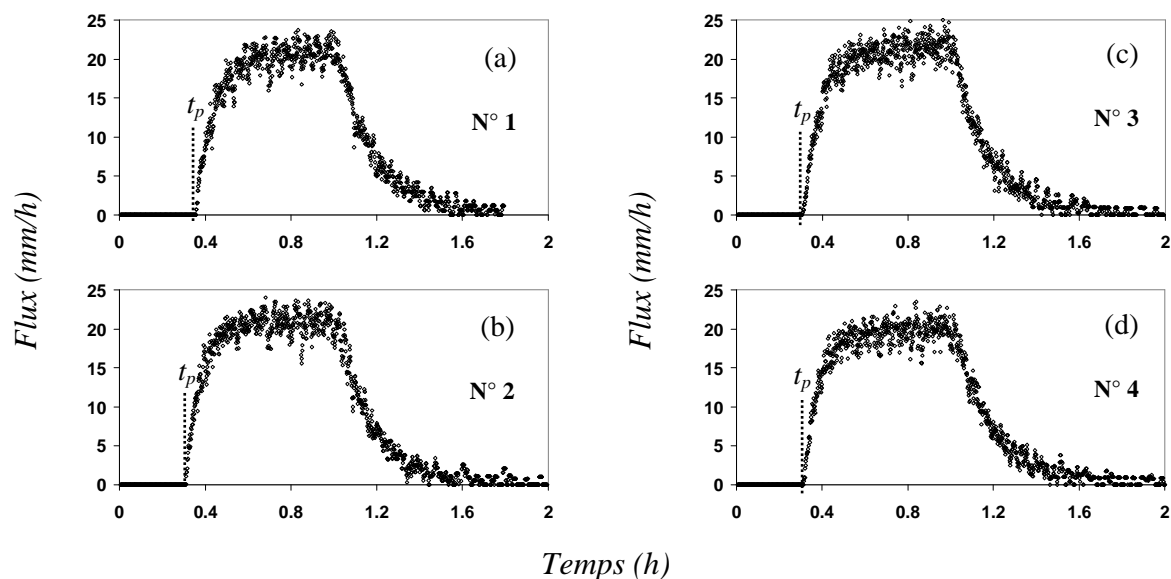
Annexe 2.6 : Ensemble des particulogrammes de la colonne E pour des pauses allant de 7 h à 929 h.



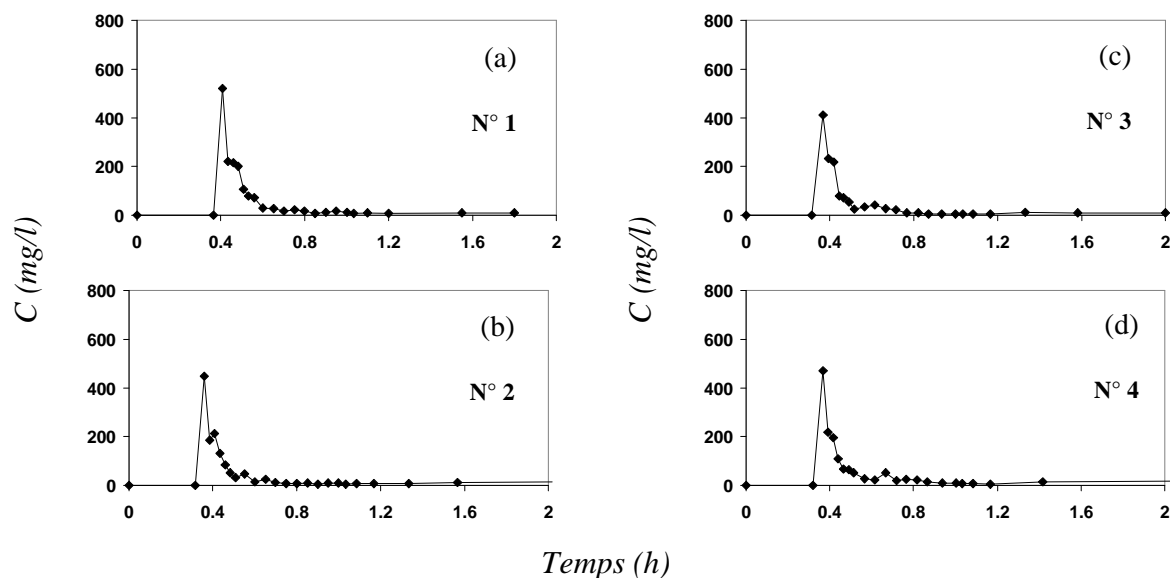
Annexe 2.7 : Ensemble des courbes cumulées de la colonne E pour différentes durées de pause.
(a) : Durées de pause allant de 7 h à 407.7 h. (b) : Durées de pauses allant de 407.7 h à 929 h. Les lignes pointillées sont les courbes simulées selon l'expression (1). L'erreur sur la masse cumulée de particules a été estimée en prenant en considération l'erreur de mesure sur la balance, l'erreur de mesure avec le spectrophotomètre, et l'erreur sur la régression linéaire d'étalonnage de celui-ci. La somme de toutes ces erreurs à la fin de l'événement pluvieux était inférieure à 1 mg.



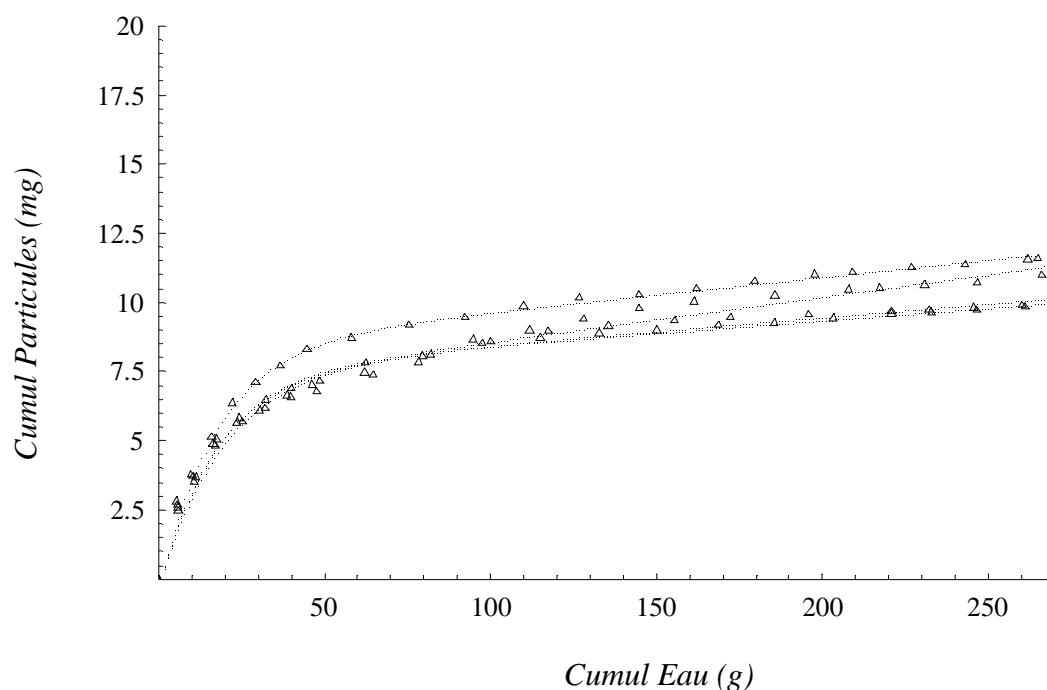
Annexe 2.8 : Paramètres correspondant à la simulation des courbes cumulées selon l'expression (1), et ceci pour les différentes pauses testées sur la Colonne E. (a) L'ordonnée à l'origine i (mg) représente la contribution du pic du particulogramme à l'ensemble des particules mobilisées. (b) La pente p (mg/g) représente la contribution de la queue du particulogramme à l'ensemble des particules mobilisées. (c) La masse cumulée d'eau critique MCE_c (g) représente la quantité d'eau qui assure le passage du comportement exponentiel au comportement linéaire (Figure III.3.3)



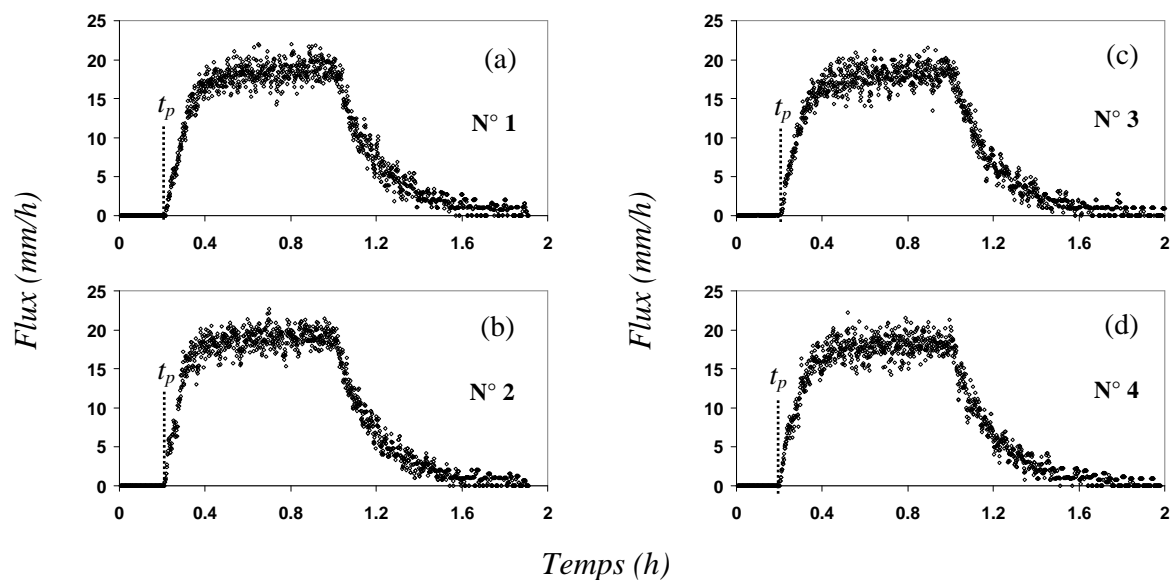
Annexe 2.9 : Ensemble des hydrogrammes pour 4 événements pluvieux essayés sur la colonne M avec une durée de pause régulière d’une semaine (168 h). Le numéro N° indique l’ordre chronologique de l’événement. Le temps de percée t_p est compté à partir du début de l’irrigation et il correspond à la sortie de la première goutte d’eau (arrivée du front d’imbibition) en bas de la colonne.



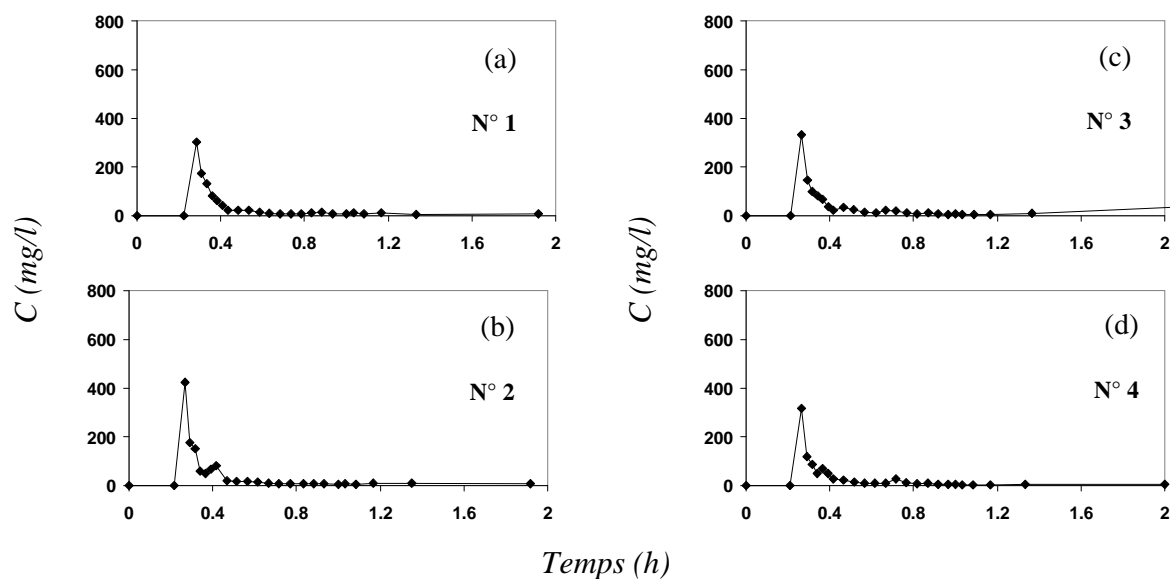
Annexe 2.10 : Ensemble des particulogrammes pour 4 événements pluvieux essayés sur la colonne M avec une durée de pause régulière d’une semaine (168 h). Le numéro N° indique l’ordre chronologique de l’événement.



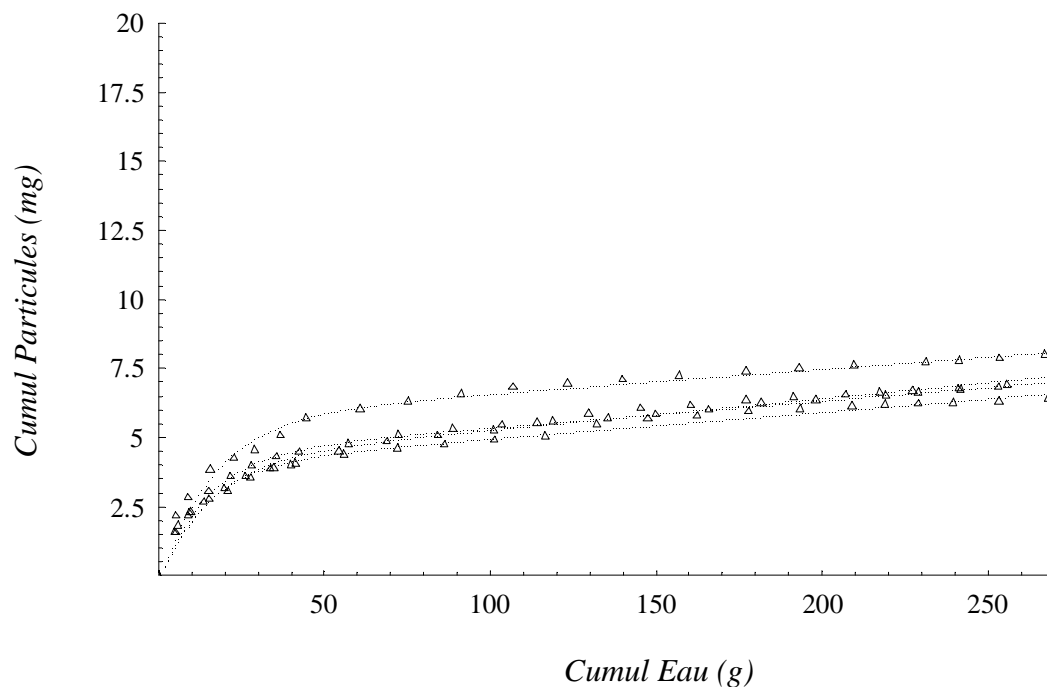
Annexe 2.11 : Ensemble des courbes cumulées simulées pour 4 événements pluvieux essayés sur la colonne M avec une durée de pause régulière d'une semaine (168 h). Les lignes pointillées sont les courbes simulées selon l'expression (1). Les triangles représentent les données expérimentales. L'erreur sur la masse cumulée est de l'ordre de 0.7 mg.



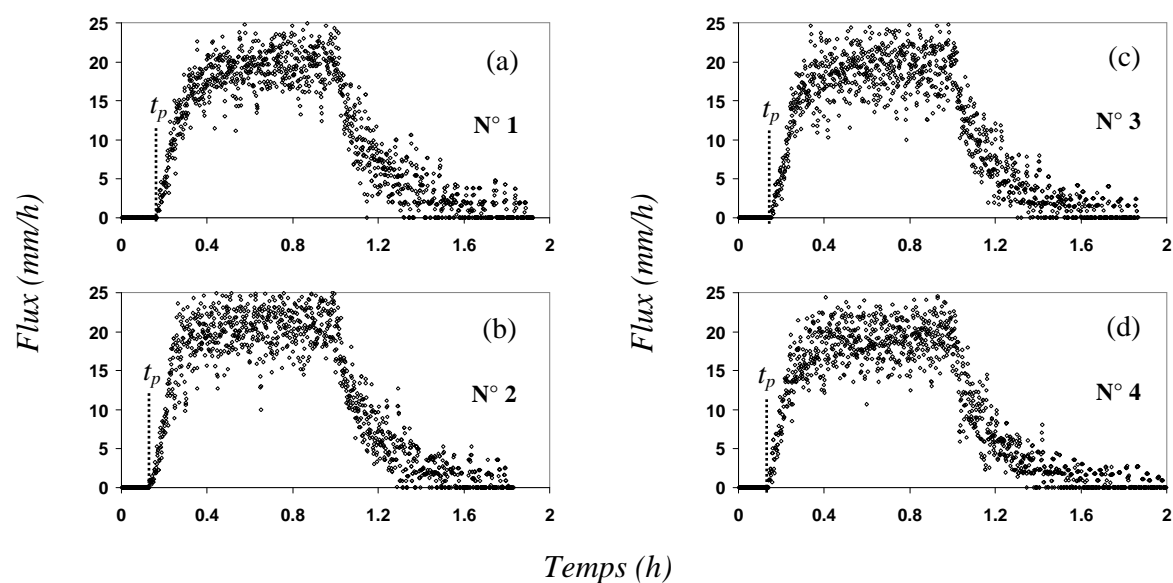
Annexe 2.12 : Ensemble des hydrogrammes pour 4 événements pluvieux essayés sur la colonne M avec une durée de pause régulière de deux jours (47 h). Le numéro N° indique l'ordre chronologique de l'événement. Le temps de percée t_p est compté à partir du début de l'irrigation et il correspond à la sortie de la première goutte d'eau (arrivée du front d'imbibition) en bas de la colonne.



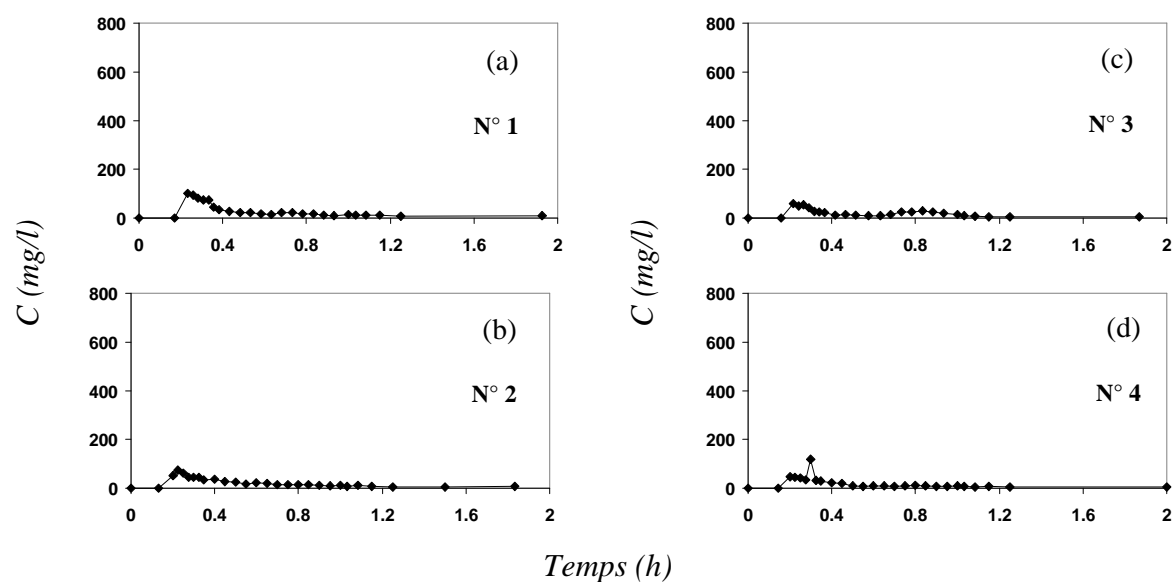
Annexe 2.13 : Ensemble des particulogrammes pour 4 événements pluvieux essayés sur la colonne M avec une durée de pause régulière de deux jours (47 h). Le numéro N° indique l'ordre chronologique de l'événement.



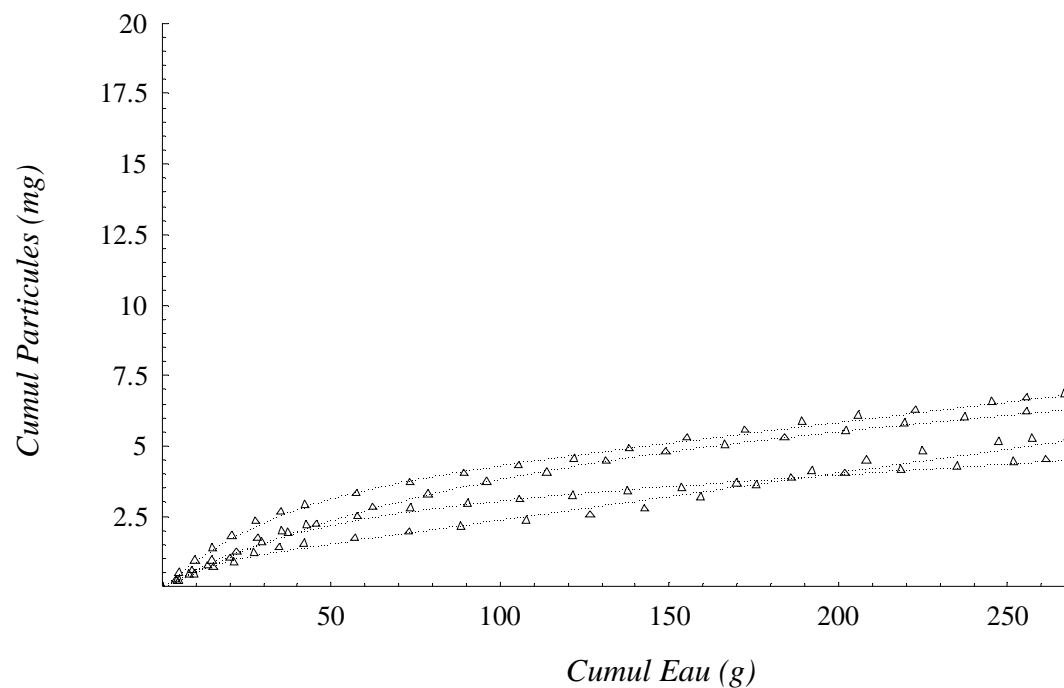
Annexe 2.14 : Ensemble des courbes cumulées simulées pour 4 événements pluvieux essayés sur la colonne M avec une durée de pause régulière de deux jours (47 h). Les lignes pointillées sont les courbes simulées selon l'expression (1). Les triangles représentent les données expérimentales. L'erreur sur la masse cumulée est de l'ordre de 0.7 mg.



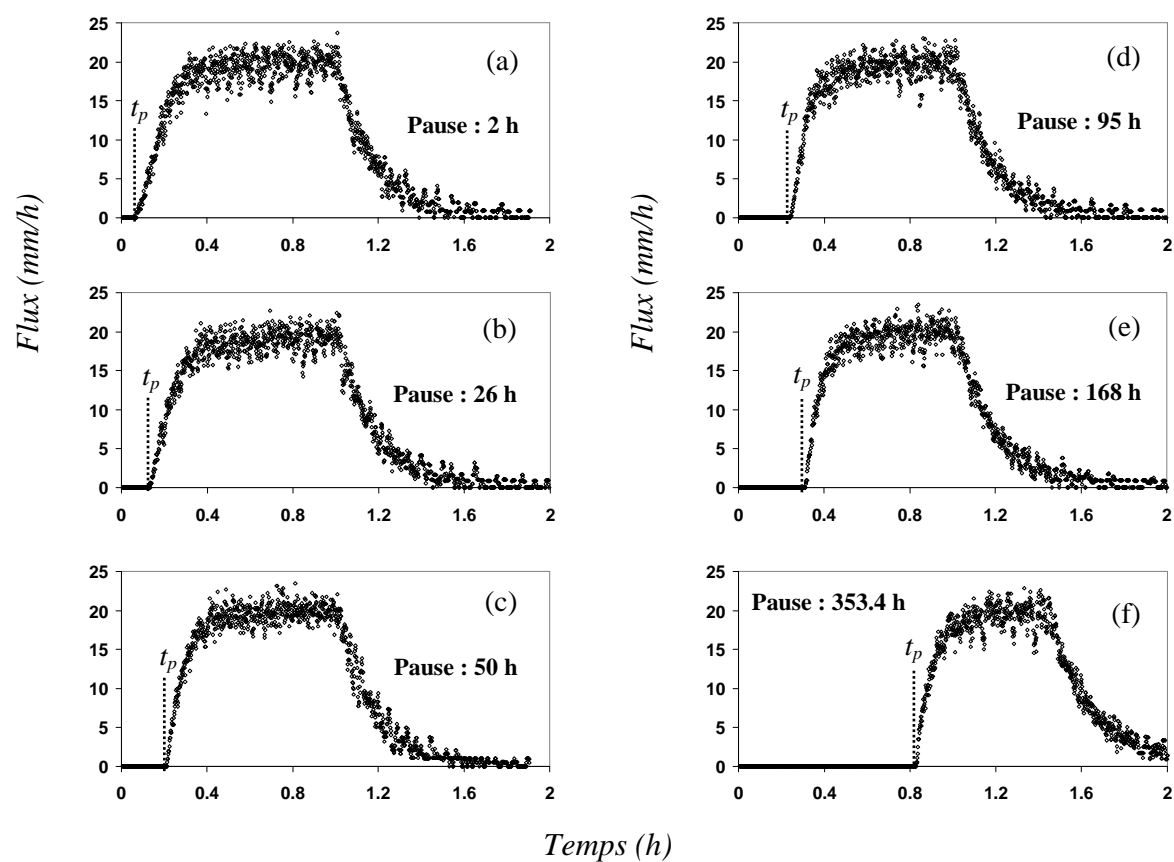
Annexe 2.15 : Ensemble des hydrogrammes pour 4 événements pluvieux essayés sur la colonne M avec une durée de pause régulière d'un jour (23 h). Le numéro N° indique l'ordre chronologique de l'événement. Le temps de percée t_p est compté à partir du début de l'irrigation et il correspond à la sortie de la première goutte d'eau (arrivée du front d'imbibition) en bas de la colonne.



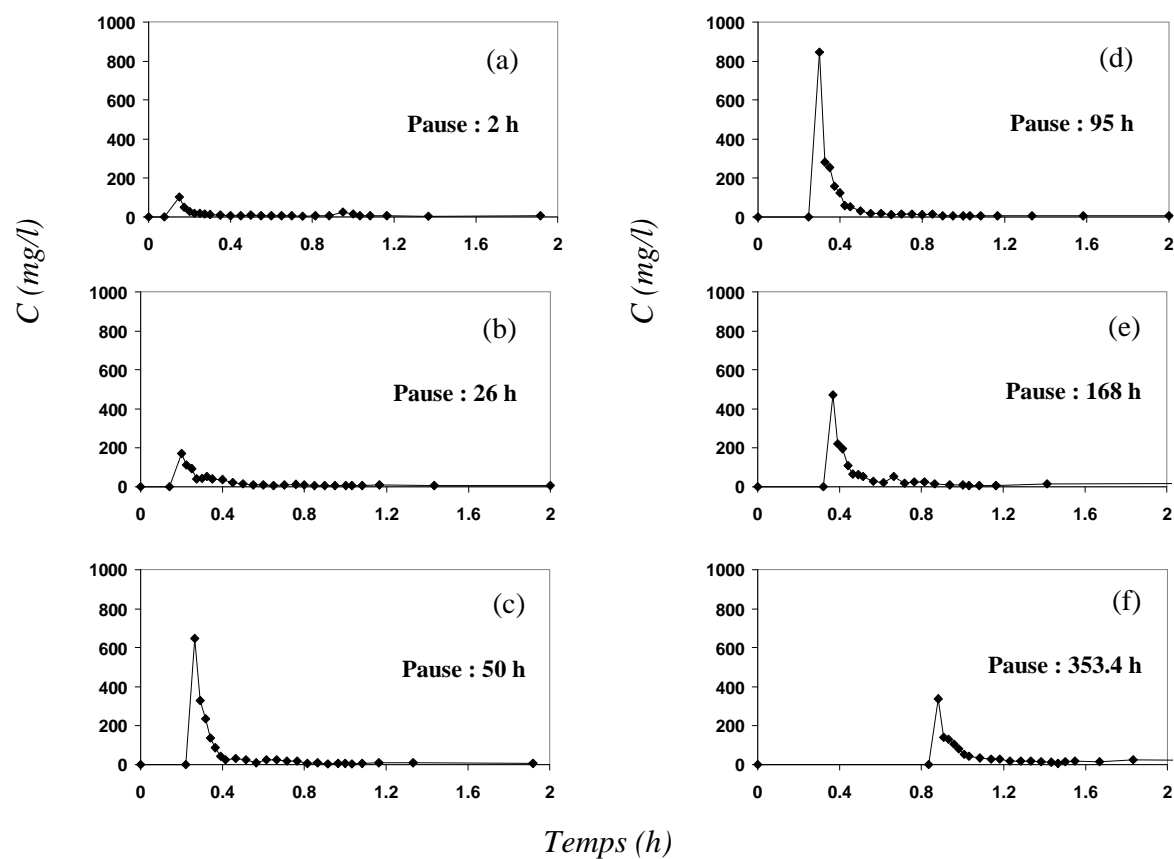
Annexe 2.16 : Ensemble des particulogrammes pour 4 événements pluvieux essayés sur la colonne M avec une durée de pause régulière d'un jour (23 h). Le numéro N° indique l'ordre chronologique de l'événement.



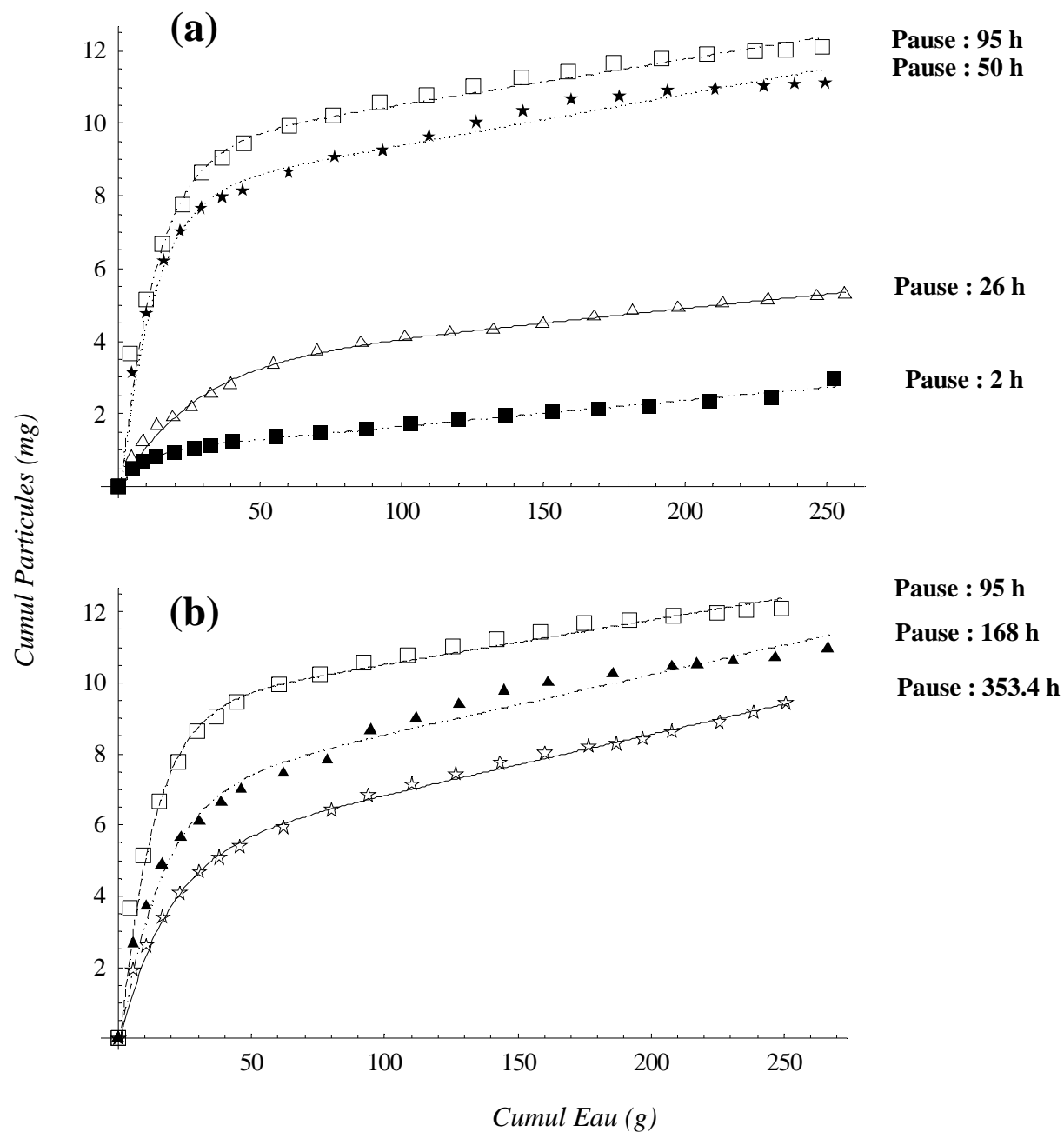
Annexe 2.17 : Ensemble des courbes cumulées simulées pour 4 événements pluvieux essayés sur la colonne M avec une durée de pause régulière d'un jour (23 h). Les lignes pointillées sont les courbes simulées selon l'expression (1). Les triangles représentent les données expérimentales. L'erreur sur la masse cumulée est de l'ordre de 0.7 mg.



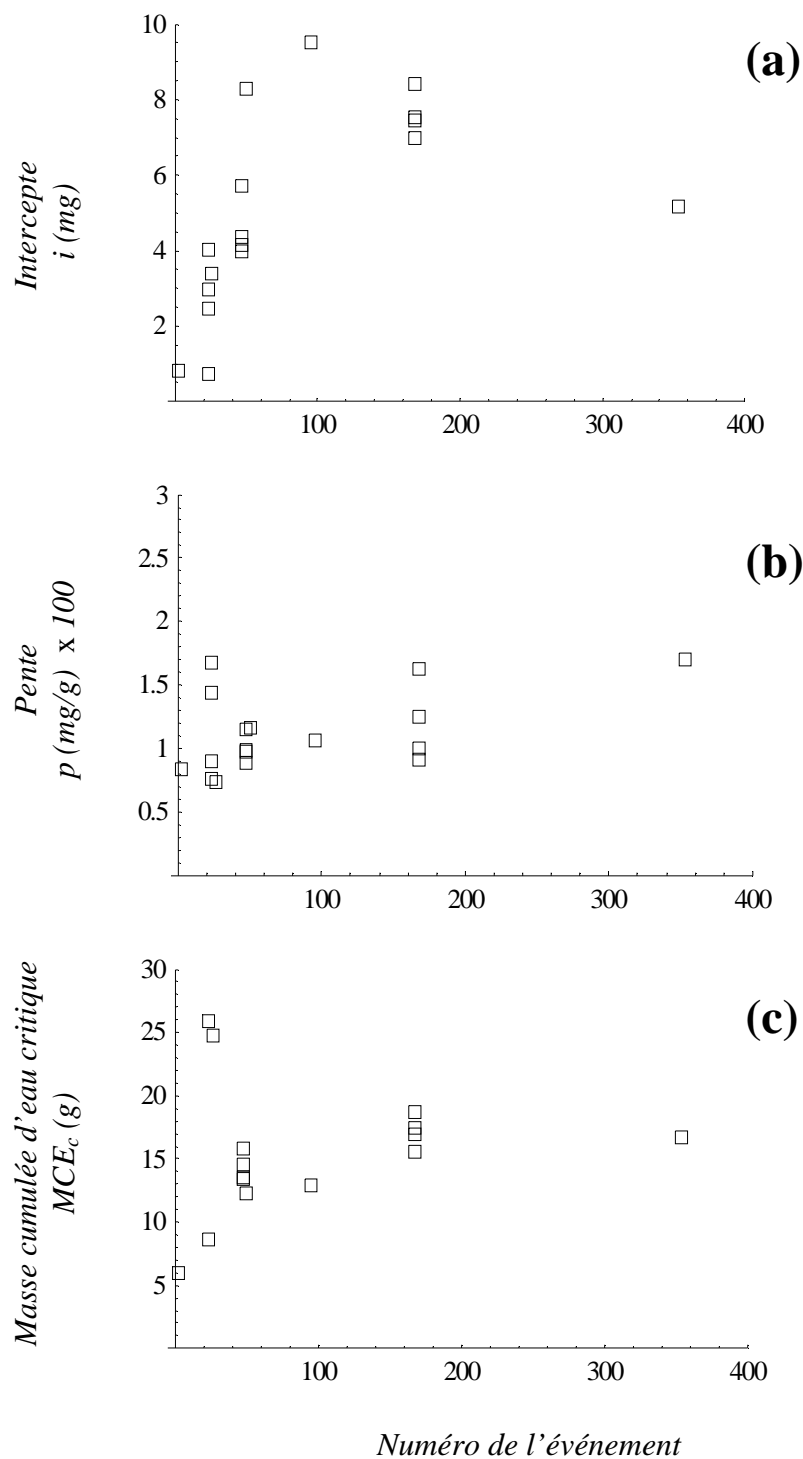
Annexe 2.18 : Ensemble des hydrogrammes pour les 6 pauses irrégulières essayées sur la colonne M dans l'ordre chronologique suivant : 168, 26, 2, 95, 50 et 353.4 h. Le temps de percée t_p est compté à partir du début de l'irrigation et il correspond à la sortie de la première goutte d'eau (arrivée du front d'imbibition) en bas de la colonne.



Annexe 2.19 : Ensemble des particulogrammes pour les 6 pauses irrégulières essayées sur la colonne M dans l'ordre chronologique suivant : 168, 26, 2, 95, 50 et 353.4 h.



Annexe 2.20 : Ensemble des courbes cumulées pour les 6 pauses irrégulières essayées sur la colonne M dans l'ordre chronologique suivant : 168, 26, 2, 95, 50 et 353.4 h. (a) Pauses allant de 2 h à 95 h. (b) Pauses allant de 95 h à 353.4 h. Les lignes pointillées sont les courbes simulées selon l'expression (1). L'erreur sur la masse cumulée est de l'ordre de 0.7 mg.



Annexe 2.21 : Paramètres correspondant à la simulation des courbes cumulées selon l'expression (1), et ceci pour les 17 événements de la Colonne M. Les événements comprennent à la fois les pauses régulières et les pauses irrégulières. (a) L'ordonnée à l'origine i (mg) représente la contribution du pic du particulogramme à l'ensemble des particules mobilisées. (b) La pente p (mg/g) représente la contribution de la queue du particulogramme à l'ensemble des particules mobilisées. (c) La masse cumulée d'eau critique MCE_c (g) représente la quantité d'eau qui assure le passage du comportement exponentiel au comportement linéaire (Figure III.3.3)

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Adamczyk, Z., K. Jaszczolt, A. Michna, B. Siwek, L. Szyk-Warszyn'ska, and M. Zembala.** 2005. Irreversible adsorption of particles on heterogeneous surfaces. *Advances in Colloid and Interface Science* 118: 25–42.
- Auset, M., F. Brissaud, C. Drakidès, and V. Lazarova.** 2002. Clogging management and removal of enteric bacteria from secondary effluents by infiltration percolation, IWA Regional Symposium on water recycling in the mediterranean region, Iraklio, Greece, sept 2002, 26-29. 2: 147-150.
- Baveye, P., P. Vandevivere, B. L. Hoyle, P. C. DeLeo, and D. S. de Lozada.** 1998. Environmental impact and mechanisms of biological clogging of saturated soils and aquifer materials. *Crit. Rev. Environ. Sci. Technol.* 28: 123–191.
- Beven, K., and P. Germann.** 1982. Macropores and water flow in soils. *Water Resour. Res.* 18: 1311–1325.
- Bond, W. J.** 1986. Illuvial band formation in a laboratory column of sand. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 50: 265–267.
- Box, M. J.** 1965. A comparison of several current optimization methods and the use of transformations in constrained problems. *Comput. J.* 8: 67-77.
- Bradford, S.A., S. R. Yates, M. Bettahar, and J. Simunek.** 2002. Physical factors affecting the fate and transport of colloid in saturated porous media. *Water Resour. Res.* 38: 1327. doi: 10.1029/2002WR001240
- Bradford, S. A., J. Simunek, M. Bettahar, M. Th. van Genuchten, and S. R. Yates.** 2003. Modeling colloid attachment, straining, and exclusion in saturated porous media. *Environ. Sci. Technol.* 37: 2242–2250.
- Bresler, E., and G. Dagan.** 1983. Unsaturated flow in spatially variable fields. 2. Application of water flow models to various fields. *Water Resour. Res.* 19: 421-428.
- Bresler, E., and A. Laufer.** 1974. Anion exclusion and coupling effects in nonsteady transport through unsaturated soils. II. Laboratory and numerical experiments, *Soil Sci. Soc. Am. Proc.* 38: 213-218.
- Broyden, G. C.** 1965. A class of methods for solving nonlinear simultaneous equations. *Math. Comput.* 19: 577-593.
- Buddemeier, R. W., and J. R. Hunt.** 1988. Transport of colloidal contaminants in groundwater : radionuclide migration at the Nevada test site. *Appl. Geochem.* 3: 535-548.
- Buol, S. W., and F. D. Hole.** 1961. Clay skin genesis in Wisconsin soils. *Soil Sci. Soc. Am. Proc.* 25: 377–379.
- Camesano, T. A., K. M. Unice, and B. E. Logan.** 1999. Blocking and ripening of colloids in porous media and their implications for bacterial transport, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects.* 160: 291-308.
- Capowiez, Y.** 1999. Structure tridimensionnelle des réseaux de galeries et trajectoires de lombriciens - Approches méthodologiques et expérimentales. ENSA Montpellier 272 pp.
- Crist, J. T., J. F. McCarthy, Y. Zevi, P. Baveye, J. A. Throop, and T. S. Steenhuis.** 2004. Pore-Scale Visualization of Colloid Transport and Retention in Partly Saturated Porous Media. *Vadose zone Journal* 3 :444–450.

- Deguelldre, C., H. R. Pfeiffer, W. Alexander, B. Wernli, and R. Bruetsch.** 1996. Colloid properties in granitic groundwater systems. I : Sampling and characterisation. *Appl. Geochem.* 11: 677-695.
- De Jonge, H., O. H. Jacobsen, L. W. de Jonge, and P. Moldrup.** 1998. Particle-facilitated transport of prochloraz in undisturbed sandy loam soil columns. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 27: 1495–1503.
- de Jonge, L. W., P. Moldrup, G. H. Rubæk, K. Schelde, and J. Djurhuus.** 2004. Particle leaching and particle-facilitated transport of Phosphorus at field scale. *Vadose Zone J.* 3: 462-470.
- Derjaguin, B. V., and L. Landau.** 1941. Theory of stability of highly charged lyophobic sols and adhesion of highly charged particles in solutions of electrolytes. *Acta Physicochim. USSR* 14: 633-652.
- Di Pietro, L., S. Ruy and Y. Capowiez.** 2003. Predicting water flow in soils by traveling-dispersive waves. *J. Hydrol.* 278 (1-4): 64-75.
- Dorigo, M., and G. Maria.** 1997. Ant colony system. A cooperative learning approach to the traveling salesman problem. *IEEE Trans. Evol. Comput.* 1: 53-66.
- El-Farhan, Y. H., N. M. Denovio, J. S. Herman, and G. M. Hornberger.** 2000. Mobilization and transport of soil particles during infiltration experiments in an Agricultural field, Shenandoah Valley, Virginia. *Environ. Sci. Technol.* 34 (17): 3555 - 3559.
- Elimelech, M. and C. R. O'Melia.** 1990. Kinetics of deposition of colloidal particles in porous media. *Environ. Sci. Technol.* 24 (10): 1528-1536.
- Fletcher, R.** 1963. Generalized inverses for nonlinear equations and optimization. In R. Rabinowitz (ed.), *Numerical Methods for Non-linear Algebraic Equations*. London: Gordon and Breach.
- Frenkel, H., J. O. Goertzen, and J. D. Rhoades.** 1978. Effects of clay type and content, exchangeable sodium percentage, and electrolyte concentration on clay dispersion and soil hydraulic conductivity. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 42: 32–39.
- Gamerding, A. P. and D. I. Kaplan.** 2001a. Physical and chemical determinants of colloid transport and deposition in water-unsaturated sand and Yucca Mountain Tuff material. *Environ. Sci. Technol.* 35 (12): 2497-2504.
- Gamerding, A. P. and D. I. Kaplan.** 2001b. Colloid transport and deposition in water-saturated Yucca Mountain Tuff as determined by Ionic Strength. *Environ. Sci. Technol.* 35 (16): 3326-3331.
- Gélard, D.** 2005. Identification et caractérisation de la cohésion interne du matériau terre dans ses conditions naturelles de conservation. Ph.D. thesis, 198 pp., Institut National Polytechnique de Grenoble, France.
- Ghezzehei, T., and D. Or.** 2000. Dynamics of soil aggregate coalescence governed by capillary and rheological processes. *Water Resour. Res.* 36 (2): 367-379.
- Ginn, T. R.** 2000 a. On the distribution of multicomponent mixtures over generalized exposure time in subsurface flow and reactive transport: Theory and formulations for residence-time-dependent sorption/desorption with memory, *Water Resour. Res.* 36 (10): 2885-2893.

- Ginn, T. R.** 2000 b. On the distribution of multicomponent mixtures over generalized exposure time in subsurface flow and reactive transport: Batch and column applications involving residence-time distributions and non-Markovian reaction kinetics, *Water Resour. Res.* 36 (10): 2895-2903.
- Ginn, T. R., B. D. Wood, K. E. Nelson, T. D. Scheibe, E. M. Murphy, and T. P. Clement.** 2002. Processes in microbial transport in the natural subsurface, *Advances in Water Resources* 25: 1017-1042.
- Goldberg, D. E.** 1989. *Genetic Algorithms in Search, Optimization, and Machine Learning*, Reading, MA: Addison-Wesley.
- Goldfarb, D., and B. Lapidus.** 1968. Conjugate gradient method for nonlinear programming problems with linear constraints. *I & EC Fundam.* 7: 142- 151.
- Gomez-Suarez, C., H. J. Busscher, and H. C. van der Mei.** 2001. Analysis of bacterial attachment from substratum surfaces by the passage of air-liquid interfaces. *Appl. Environ. Microbiol.* 67: 2531–2537.
- Govindaraju, R. S., L. N. Reddi, and S. K. Kasavaraju.** 1995. A physically based model for mobilization of kaolinite particles under hydraulic gradients, *J. Hydrol.*, 172, 331-350.
- Grant, R., A. Laubel, B. Kronvang, H. E. Andersen, L. M. Svendsen and A. Fuglsang.** 1996. Loss dissolved and particulate phosphorus from arable catchments by subsurface drainage. *Water Res.* 30 (11): 2633-2642.
- Grolimund, D., and M. Borkovec.** 1999. Long-term release kinetics of colloidal particles from natural porous media. *Environ. Sci. Technol.* 33: 4054–4060.
- Grolimund, D., M. Elimelech, M. Borkovec, K. Barmettler, R. Kretzschmar and H. Sticher.** 1998. Transport of in situ mobilized colloidal particles in packed soil columns. *Environ. Sci. Technol.* 32 (22): 3562-3569.
- Grolimund, D., K. Barmettler, and M. Borkovec.** 2001. Release and transport of colloidal particles in natural porous media. 2. Experimental results and effects of ligands, *Water Resour. Res.* 37 (3): 571-582.
- Gruesbeck, C. and R. E. Collins.** 1982. Entrainment and deposition of fine particles in porous media. *Society of Petroleum Engineers Journal*: 847-856.
- Haggerty, R., and S. M. Gorelick.** 1995, Multiple-rate transfer for modeling diffusion and surface reactions in media with pore-scale heterogeneity, *Water Resour. Res.* 31 (10): 2383-2400.
- Haggerty, R., and S. M. Gorelick.** 1998. Modeling mass transfer processes in soil columns with pore-scale heterogeneity, *Soil Sci. Soc. Am. J.* 62: 62-74.
- Hardy, I. A. J., A. D. Carter, P. B. Leeds-Harrison, I. D. L. Foster and R. M. Sanders.** 2000. The origin of sediment in field drainage water. I.D.L. Foster. *Tracers in Geomorphology*. John Wiley & Sons Ltd. 241-257.
- Harter, T., S. Wagner and E. R. Atwill.** 2000. Colloid transport and filtration of *Cryptosporidium parvum* in sandy soils and aquifer sediments. *Environ. Sci. Technol.* 34 (1): 62-70.
- Herzig, J. P., D. M. Leclerc, and P. Le Goff.** 1970. Flow of suspensions through porous media—Application to deep filtration. *Ind. Eng. Chem.* 62: 8–35.

- Holland, J. H.** 1975. *Adaptation in Natural and Artificial Systems*, Ann Arbor: University of Michigan Press.
- Hunter, R. J.** 1986. *Foundations of Colloid Science*. Vols. 1 and 2, Oxford University Press, London.
- Hurst, C. J.** 1980. Survival of enteroviruses in rapid-infiltration basins during the land application of waste-water. *Appl. Environ. Microbiol.* 40: 192–200.
- Jacobsen, O. H., P. Moldrup, C. Larsen, L. Konnerup and L. W. Petersen.** 1997. Particle transport in macropores of undisturbed soil columns. *J. Hydrol.* 196: 185-203.
- Jarvis, N. J., K. G. Villholth, and B. Ulen.** 1999. Modelling particle mobilization and leaching in macroporous soil, *Eur. J. Soil Sci.* 50: 621-632.
- Jewett, D. G., B. E. Logan, R. G. Arnold, and R. C. Bales.** 1999. Transport of *Pseudomonas fluorescens* strain P17 through quartz sand columns as a function of water content. *J. Contam. Hydrol.* 36: 73–89.
- Johnson, P. R., and M. Elimelech.** 1995. Dynamics of colloid deposition in porous media: blocking based on random sequential adsorption. *Langmuir* 11: 801-812.
- Johnson, W. P., K. A. Blue, B. E. Logan, and R. G. Arnold.** 1995. Modeling bacterial detachment during transport through porous media as a residence-time-dependent process, *Water Resource Research* 31 (11): 2649-2658.
- Jury, A. W., W. R. Gardner, and W. H. Gardner.** 1991. *Soil Physics*, 5th ed. John Wiley, New York.
- Kaplan, D. I., P. M. Bertsch, D. C. Adriano, and W. P. Miller.** 1993. Soil-borne mobile colloids as influenced by water flow and organic carbon. *Environ. Sci. Technol.* 27 (6): 1193-1200.
- Kaplan, I., P. M. Bertsch, and D. C. Adriano.** 1997. Mineralogical and physicochemical differences between mobile and nonmobile colloidal phases in reconstructed pedons. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 61: 641-649.
- Khilar, K. C., and H. C. Fogler.** 1984. The existence of a critical salt concentration for particle release, *J. Colloid Interface Sci.* 101 (1): 214.
- Kirkpatrick, S., C. D. Gelatt Jr., and M. P. Vecchi.** 1983. Optimization by simulated annealing. *Science* 220: 671-680.
- Kjaergaard, C., P. Moldrup, L. W. de Jonge, and O. H. Jacobsen.** 2004. Colloid mobilization and transport in undisturbed soil columns. II. The role of colloid dispersibility and preferential flow, *Vadose Zone J.* 3: 424-433.
- Kretzschmar, R., K. Barmettler, D. Grolimund, Y. Yan, M. Borkovec, and H. Sticher.** 1997. Experimental determination of colloid deposition rates and collision efficiencies in natural porous media, *Water Resour. Res.* 33 (5): 1129-1137.
- Kretzschmar, R., M. Borkovec, D. Grolimund, and M. Elimelech.** 1999. Mobile subsurface colloids and their role in contaminant transport. *Adv. Agron.* 66: 121-193.
- Kukushkin, S. A., and V. V. Slyozov.** 1994. Crystallization of binary melts and decay of supersaturated solid solutions at the ostwald ripening stage under non-isothermal conditions. *J. Phys. Chem. Solids* 56 (9): 1259-1269.
- Laegdsmand, M., K. G. Villholth, M. Ullum and K. H. Jensen.** 1999. Processes of colloid mobilization and transport in macroporous soil monoliths. *Geoderma*: 33-59.

- Laubel, A., O. H. Jacobsen, B. Kronvang, R. Grant and H. E. Andersen.** 1999. Subsurface drainage loss of particles and phosphorus from field plot experiments and a tile-drained catchment. *J. Environ. Qual.* 28: 576-584.
- Lenhart, J. J., and J. E. Saiers.** 2002. Transport of silica colloids through unsaturated porous media: Experimental results and model comparisons. *Environ. Sci. Technol.* 36: 769-777.
- Levin, J. M., J. S. Herman, G. M. Hornberger, and J. E. Saiers.** 2006. Colloid mobilization from a variably saturated intact soil core. *Vadose Zone J.* 5: 564-569.
- Majdalani, S., E. Michel, L. Di Pietro, R. Angulo-Jaramillo, and M. Rousseau.** 2007a. Mobilization and preferential transport of soil particles during infiltration: A core-scale modeling approach. *Water Resour. Res.*, 43, W05401, doi: 10.1029/2006WR005057.
- Majdalani, S., R. Angulo-Jaramillo, and L. Di Pietro.** 2007b. KDW-GA: Modelling preferential water flow in unsaturated soils using a binary genetic algorithm inverse method. *Environmental Modelling & Software*, submitted.
- Majdalani, S., E. Michel, L. Di Pietro, and R. Angulo-Jaramillo.** 2007c. Wetting and drying cycles effect on in-situ particle mobilization, *European Journal of Soil Sciences*, submitted.
- Matlack, K. S., and D. W. Houseknecht.** 1989. Emplacement of clay into sand by infiltration. *J. Sediment. Petrol.* 59: 77-87.
- McCarthy, J. F., and J. M. Zachara.** 1989. Subsurface transport of contaminants. *Environ. Sci. Technol.* 23 (5): 496-502.
- McGechan, M. B., and D. R. Lewis.** 2002. Transport of particulate and colloid-sorbed contaminants through soil. Part 1: General principles. *Biosyst. Eng.* 83: 255-273.
- McKay, L. D., W. E. Sanford and J. M. Strong.** 2000. Field-scale migration of colloidal tracers in a fractured shale saprolite. *Ground Water* 38 (1): 139-147.
- McKeague, J. A., and R. J. St. Arnaud.** 1969. Pedotranslocation: Eluviation-illuviation in soils during the Quaternary. *Soil Sci.* 107: 428-434.
- Nelder, J. A., et R. Mead.** 1965. A simplex method for function minimization. *Comput. J.* 7: 308-313.
- Nielsen, D. R., M. Th. Van Genuchten, and J. W. Biggar.** 1986. Water flow and solute transport processes in the unsaturated zone. *Water Resour. Res.* 2: 89S-108S.
- Nielsen, D. R., and J. W. Biggar.** 1962. Miscible displacement. III. Theoretical considerations, *Soil Sci. Soc. Am. Proc.* 26: 216-221.
- Parsopoulos, K. E., and M. N. Vrahatis.** 2002. Recent approaches to global optimization problems through particle swarm optimization. In *Natural Computing*. Netherlands: Kluwer Academic, pp. 235-306.
- Pilgrim, D. H., and D. D. Huff.** 1983. Suspended sediment in rapid subsurface stormflow on a large field plot. *Earth Surf. Proc. Landforms* 8: 451-463.
- Powell, M. J. D.** 1964. An efficient way for finding the minimum of a function of several variables without calculating derivatives. *Comput. J.* 7: 155-162.
- Powelson, D. K., C. P. Gerba, and M. T. Yahya.** 1993. Virus transport and removal in waste-water during aquifer recharge. *Water Res.* 27: 583-590.

- Quirk, J. P., and R. K. Schofield.** 1955. The effect of electrolyte concentration on soil permeability. *J. Soil Sci.* 6: 163–178.
- Redman, J. A., S. B. Grant, T. M. Olson, and M. K. Estes.** 2001. Pathogen filtration, heterogeneity, and potable reuse of wastewater. *Environ. Sci. Technol.* 35: 1798–1805.
- Powell, M. J. D.** 1964. An efficient way for finding the minimum of a function of several variables without calculating derivatives. *Comput. J.* 7: 155-162.
- Rousseau, M.** 2003. Particle transport in an unsaturated soil: from experiments in an undisturbed column to the built of a physically-based model, Ph.D. thesis, 242 pp., Institut National Polytechnique de Grenoble, France.
- Rousseau, M., L. Di Pietro, R. Angulo-Jaramillo, D. Tessier, and B. Cabibel.** 2004. Preferential Transport of Soil Colloidal Particles: Physicochemical Effects on Particle Mobilization, *Vadose Zone J.* 3: 247-261.
- Roy, S. B. and D. A. Dzombak.** 1996a. Na^+ - Ca^{2+} exchange effects in the detachment of latex colloids deposited in glass bead porous media. *Colloids Surf. A* 119: 133-139.
- Roy, S. B., and D. A. Dzombak.** 1996b. Colloid release and transport processes in natural and model porous media, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 107: 245-262.
- Roy, S. B. and D. A. Dzombak.** 1997. Chemical factors influencing colloid-facilitated transport of contaminants in porous media. *Environ. Sci. Technol.* 31 (3): 656-664.
- Ryan, J. N., and M. Elimelech.** 1996. Colloid mobilization and transport in groundwater. *Colloids Surf. A* 107: 1-56.
- Ryan, J. N., and P. M. Gschwend.** 1994. Effect of ionic strength and flow rate on colloid release: Relating kinetics to intersurface potential energy. *J. Colloid Interface Sci.* 164: 21–34.
- Ryan, J. N., T. H. Illangasekare, M. I. Litaor, and R. Shannon.** 1998. Particle and plutonium mobilization in macroporous soils during rainfall simulations. *Environ. Sci. Technol.* 32: 476–482.
- Saiers, J. E., and J. J. Lenhart.** 2003a. Ionic-strength effects on colloid transport and interfacial reactions in partially saturated porous media. *Water Resour. Res.* 39: 1256. doi:10.1029/2002WR001887
- Saiers, J. E., and J. J. Lenhart.** 2003b. Colloid mobilization and transport within unsaturated porous media under transient-flow conditions. *Water Resour. Res.* 39: 1019. doi:10.1029/2002WR001370.
- Saiers, J. E., G. M. Hornberger, D. B. Gower, and J. S. Herman.** 2003. The role of moving air–water interfaces in colloid mobilization within the vadose zone. *Geophys. Res. Lett.* 30:2083. doi:10.1029/2003GL018418
- Sakthivadivel, R.** 1966. Theory and mechanism of filtration of non-colloidal fines through a porous medium. Rep. HEL 15-5. Hydraulic Engineering Laboratory, University of California, Berkeley.
- Santamarina, J. C.** 2002. Soil Behavior at the Microscale: Particle Forces, Soil Behavior and Soft Ground Construction - The Ladd Symposium, October, MIT, Boston, ASCE Special Publications #119, pp. 25-56.

- Shanno, D. F., 1970.** An accelerated gradient projection method for linearly constrained nonlinear estimation. *SIAM J. Appl. Math.* 18: 322-334.
- Schelde, K., P. Moldrup, O. H. Jacobsen, H. de Jonge, L. W. de Jonge, and T. Komatsu.** 2002. Diffusion-limited mobilization and transport of natural colloids in macroporous soil. *Vadose Zone J.* 1: 125 -136.
- Scherer, G. W.** 1990. Theory of drying. *J. Am. Ceram. Soc.* 73: 3-14.
- Schwefel, H.** 1995. Evolution and Optimum seeking. New York: Wiley.
- Selker, J. S., C. K. Keller, and J. T. McCord.** 1999. Vadose zone processes. Lewis Publishers, Boca Raton, FL.
- Sharma, M. M., H. Chamoun, D. S. H. Sita Rama Sarma and R. S. Schechter.** 1992. Factors Controlling the Hydrodynamic Detachment of Particles from Surfaces. *J. Colloid Interface Sci.* 149 (1): 121-134.
- Silliman, S. E.** 1995. Particle transport through two-dimensional, saturated porous media : influence of physical structure of the medium. *J. Hydrol.* 167: 79-98.
- Sirivithayapakorn, S., and A. Keller.** 2003. Transport of colloids in unsaturated porous media: A pore-scale observation of processes during the dissolution of the air–water interface. *Water Resour. Res.* 39:1346. doi:10.1029/2003WR002487
- Sposito, G., W. A. Jury, and V. K. Gupta.** 1986. Fundamental problems in the stochastic convection-dispersion model of solute transport in aquifers and field soils, *Water Resour. Res.* 22: 77-88.
- Verwey, E. J. W., and J. T. G. Overbeek.** 1948. Theory of the Stability of Lyophobic Colloids. Elsevier, Amsterdam.
- Vilks, P. and D. B. Bachinski.** 1996. Colloid and suspended particle migration experiments in a granite fracture. *J. Contam. Hydrol.* 21: 269-279.
- Wan, J., and T. K. Tokunaga.** 1997. Film straining of colloids in unsaturated porous media: Conceptual model and experimental testing. *Environ. Sci. Technol.* 31: 2413–2420.
- Wan, J. and J. L. Wilson.** 1994a. Visualization of the role of the gas-water interface on the fate and transport of colloids in porous media. *Water Resour. Res.* 30 (1): 11-23.
- Wan, J. and J. L. Wilson.** 1994b. Colloid transport in unsaturated porous media. *Water Resour. Res.* 30 (4): 857-864.
- Weiss, M., Y. Lüthi, J. Ricka, T. Jörg, and H. Bebie.** 1998. Colloidal Particles at solid-liquid interfaces: mechanism of desorption kinetics, *J. Colloid Interface Sci.* 206: 322-331.
- Worrall, F., A. Parker, J. E. Rae and A. C. Johnson.** 1993. Suspended and colloidal matter in the leachate from lysimeters : implications for pesticide transport and lysimeter studies. Brighton crop protection conference.
- Worrall, F., A. Parker, J. E. Rae, and A. C. Johnson.** 1999. A study of suspended and colloidal matter in the leachate from lysimeters and its role in pesticide transport. *J. Environ. Qual.* 28: 595-604.
- Zhuang, J., Y. Jin, and M. Flury.** 2004. Comparison of colloids and kaolinite transport in porous media, *Vadose Zone Journal* 3: 395-402.

Zhuang, J., J. F. McCarthy, J. S. Tyner, E. Perfect, and M. Flury. 2007. In situ colloid mobilization in Hanford sediments under unsaturated transient flow conditions: effect of irrigation pattern. *Environ. Sci. Technol.* 41: 3199-3204.